

MESSUNG VON CO₂-SÄULENGEHALTEN
IN DER ATMOSPHERE MIT
LIDAR-METHODEN

AXEL AMEDIEK



JANUAR 2007

MESSUNG VON CO₂-SÄULENGEHALTEN
IN DER ATMOSPHERE MIT
LIDAR-METHODEN

DISSERTATION
AN DER FAKULTÄT FÜR PHYSIK
DER LUDWIG-MAXIMILIANS-UNIVERSITÄT
MÜNCHEN



VORGELEGT VON
DIPL.-PHYS. AXEL AMEDIK
GEBOREN IN MÜNCHEN

EINGEREICHT AM 30. JANUAR 2007

Gutachter der Dissertation:

1. Prof. Dr. Ulrich Schumann
2. Prof. Dr. Eberhard Riedle

Tag der mündlichen Prüfung: 16. Mai 2007

Inhaltsverzeichnis

Kurzfassung	vii
Einleitung	1
1 Theoretische Grundlagen	5
1.1 Das Messprinzip von Lidar, DIAL und IPDA	5
1.2 Lichtabsorption von Molekülen	7
1.2.1 CO ₂ -Übergänge im nahen Infrarot	7
1.2.2 Struktur des Absorptionsquerschnittes	8
1.3 Grundgleichungen für IPDA	10
1.3.1 IPDA-Prinzip	10
1.3.2 Berechnung der Teilchendichte	12
1.3.3 Berechnung des Mischungsverhältnisses	14
1.3.4 Temperaturabhängigkeit	15
1.3.5 Nutzung eines Linienmaximums oder einer Linienflanke	17
1.4 Grundlagen der Frequenzkonversion	18
1.4.1 Nichtlineare Prozesse	18
1.4.2 Phasenanpassung	20
1.5 Optisch parametrischer Oszillator (OPO)	23
1.5.1 Prinzip	24
1.5.2 Wesentliche Parameter	25
1.5.3 Injection Seeding	26
2 Numerische Simulation	28
2.1 Beschreibung des Simulators	28
2.1.1 Prinzip	29
2.1.2 Berechnung des statistischen Fehlers	29
2.1.3 Berechnung der systematischen Fehler	32
2.2 Ermittlung geeigneter CO ₂ -Absorptionslinien	33
2.2.1 Optimaler Absorptionsquerschnitt	33
2.2.2 Querempfindlichkeit zu anderen Gasen	34
2.2.3 Untersuchung der Temperaturabhängigkeit	37
2.2.4 Untersuchung der Druckabhängigkeit	40
2.3 Weitere Ursachen für Messungenauigkeiten	40
2.3.1 Ungenauigkeiten resultierend aus der Messmethode	40

2.3.2	Erforderliche Eigenschaften des Messsystems	42
2.4	Ergebnisse und Schlussfolgerungen	53
2.4.1	Optimierte Messwellenlängen und resultierende Empfindlichkeiten	53
2.4.2	Optimierter statistischer Messfehler	56
2.4.3	Definition von Anforderungen an das Messsystem	58
3	Experimenteller Aufbau	60
3.1	Auslegung des Systems	60
3.1.1	Wahl der Strahlquelle	60
3.1.2	Konzept des Messaufbaus	62
3.2	Beschreibung der Systemkomponenten	63
3.2.1	Pumplaser	63
3.2.2	Optisch parametrischer Oszillator	64
3.2.3	Laserdioden für das Injection Seeding	65
3.2.4	Online-Stabilisierung	69
3.2.5	Offline-Stabilisierung	71
3.2.6	Nachweis der spektralen Eigenschaften	71
3.2.7	Detektionsoptik	75
3.2.8	Datenerfassung	77
3.3	Ergebnisse	78
3.3.1	Eigenschaften des Systems	78
3.3.2	Abschätzung der zu erwartenden Messgenauigkeit	89
4	Validierung	90
4.1	Nullmessungen	90
4.1.1	Messung über kurze Distanz	91
4.1.2	Messung über lange Distanz	91
4.2	In-situ-IPDA-Vergleichsmessungen	92
4.2.1	Der natürliche CO ₂ -Tagesgang	92
4.2.2	Beschreibung des In-situ-Messaufbaus	94
4.2.3	Durchführung der In-situ-IPDA-Vergleichsmessungen	95
4.2.4	Auswertung	95
4.2.5	Abschätzung der zu erwartenden Messunsicherheit	96
4.3	Ergebnisse	99
4.3.1	Nullmessungen	99
4.3.2	Vergleichsmessungen	101
5	Diskussion	103
5.1	Analyse der Validierungsmessungen	103
5.1.1	Betrachtung der Vergleichsmessungen	104
5.1.2	Betrachtung der Nullmessungen	106
5.1.3	Schlussfolgerungen	106
5.2	Bewertung des Messaufbaus	107
5.3	Vorschläge für die Weiterentwicklung	109

6 Zusammenfassung	110
Anhang	113
A. Übersicht über den aktuellen Stand der Entwicklung aktiver Messsysteme . . .	113
B. Spektren von CO ₂ und Wasserdampf im nahen Infrarot	114
C. Optimierte systematische Fehler ausgewählter Messwellenlängen	116
D. Weitere Ergebnisse der Simulation des statistischen Fehlers	118
E. Bilder: Messstrecke und Strahlquelle	122
Literaturverzeichnis	126

Kurzfassung

Eine der fundamentalen Fragen der aktuellen Wissenschaft ist die Entschlüsselung des globalen Kohlenstoff-Kreislaufs insbesondere vor dem Hintergrund des anthropogenen Einflusses durch die Emission großer Mengen von CO_2 in die Atmosphäre. Aktuell gibt es keine Messsysteme, die die nötige Messgenauigkeit zur Bestimmung von Quellen, Senken und Flüssen atmosphärischen Kohlendioxids erreichen.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde die Methode der aktiven Fernerkundung atmosphärischen Kohlendioxids mittels Lidar theoretisch und experimentell untersucht. Im Vordergrund stand dabei die Entwicklung eines Differential-Absorptions-Lidars (DIAL). Der Aufbau und die Charakterisierung einer geeigneten Laserlichtquelle sowie einer präzisen Wellenlängen-Stabilisierung stellten zentrale Aspekte dar. Für ein einsetzbares System mussten darüber hinaus ein Empfangssystem, eine Steuerung und Datenerfassung sowie Systeme zur Analyse der Strahlqualität aufgebaut werden. Da die atmosphärische Rückstreuung im verwendeten Wellenlängenbereich bei $1,57 \mu\text{m}$ gering ist, wurde das System in der DIAL-Variante IPDA (Integrated Path Differential Absorption) verwirklicht, das statt der atmosphärischen Rückstreuung den Laser-Reflex einer festen Oberfläche verwendet, womit der CO_2 -Säulengehalt entlang der Messstrecke bestimmt wird. Als Laserlichtquelle wurde ein Nd:YAG-gepumptes KTP-OPO-System mit alternierendem Injection Seeding durch zwei DFB-Laserdioden verwirklicht.

Sensitivitätsstudien anhand von numerischen Simulationen lieferten Informationen über geeignete Messwellenlängen, über die maximal erreichbare Messgenauigkeit und über Anforderungen an das Messsystem. Es ergab sich, dass sich im Hinblick auf die untersuchten Aspekte die geforderte Genauigkeit im Subprozent-Bereich erreichen lässt, wobei höchste Anforderungen an die spektralen Eigenschaften der Laserlichtquelle gestellt werden.

In Testmessungen wurde die erreichbare Messgenauigkeit des entwickelten Labor-Prototypen untersucht. Es wurden Stärken und Schwächen des aufgebauten Systems und der Messmethode herausgearbeitet. So zeigte sich insbesondere, dass die beim IPDA-Messprinzip notwendige Leistungsreferenz-Messung sowie die räumliche Laserstrahl-Qualität als kritisch zu betrachten sind. Bei direkten Vergleichsmessungen mit einem In-situ-Gerät erreichte der Prototyp auf Anhieb eine Standardabweichung von 2 % bei einem Bias von unter 10 %. Die erreichte spektrale Qualität der Laserstrahlung übertraf die aufgestellten Anforderungen.

Diese Arbeit liefert einen Beitrag zum Fortschritt auf dem Gebiet der Entwicklung aktiver Systeme zur Fernerkundung atmosphärischen Kohlendioxids.

Teile dieser Arbeit sind enthalten in:

A. Amediek, A. Fix, M. Wirth, G. Ehret, „Demonstration of an Optical Parametric Oscillator System at 1,57 μm for Integrated Path Differential Absorption Lidar Measurements of Carbon Dioxide“, Proceedings of the 23rd International Laser Radar Conference **1** in Nara, Japan, 143-146 (2006)

G. Ehret, A. Amediek, C. Kiemle, M. Wirth, A. Fix, S. Houweling, A. Behrendt „Spaceborne Remote Sensing of the Greenhouse Gases CO_2 , CH_4 , N_2O by Path Integrated Differential Absorption Lidar: A Sensitivity Analysis“, Applied Physics B: Lasers and Optics, submitted (2007)

Einleitung

Während der Anfertigung dieser Doktorarbeit zwischen 2003 und 2006 hat sich der globale mittlere Kohlendioxid-Gehalt der Erdatmosphäre um 1,7 % von 374,5 $\mu\text{mol/mol}$ auf 381 $\mu\text{mol/mol}$ erhöht [1]. Kohlendioxid ist eines der wichtigsten Treibhausgase und trägt zu rund einem Drittel zum natürlichen Treibhauseffekt der Erde bei, während Wasserdampf einen Beitrag von rund zwei Dritteln liefert. Ohne den Treibhauseffekt läge die mittlere Oberflächentemperatur unseres Planeten bei -18°C statt bei aktuell $+15^\circ\text{C}$ [2]. Der Mensch verändert jedoch durch die Emission großer Mengen von Treibhausgasen, zu denen neben Kohlendioxid auch Wasserdampf, Methan, Lachgas und Ozon zählen, den natürlichen Zustand. Mit der industriellen Revolution und der damit verbundenen starken Zunahme der Nutzung fossiler Brennstoffe begann Anfang des 19. Jahrhunderts der Kohlendioxid-Gehalt von 280 $\mu\text{mol/mol}$ auf heute 381 $\mu\text{mol/mol}$ zu steigen.

Die anthropogenen CO_2 -Emissionen sind allerdings klein im Vergleich zu den natürlichen Variationen, die innerhalb des natürlich gegebenen, globalen Kohlenstoffkreislaufs auftreten (siehe Abbildung 1). Dieser umfasst den Austausch von Kohlenstoff zwischen Atmosphäre, Vegetation, Böden und Ozeanen. In der Atmosphäre liegt Kohlenstoff zu 99,6 % als CO_2 vor, insgesamt ca. 750 PgC („Petagramm Carbon“). Die Ozeane stellen mit ca. 39000 PgC das größte Reservoir dar. Des Weiteren speichert die Vegetation ca. 600 PgC und die Böden enthalten etwa 1600 PgC. Der gegenseitige Austausch zwischen Atmosphäre und Ozeanen liegt jeweils bei etwa 90 PgC pro Jahr, zwischen Atmosphäre und Vegetation jeweils bei 120 PgC pro Jahr [4].

Zu den anthropogenen Emissionen zählen im Wesentlichen die Nutzung fossiler Brennstoffe (6 PgC pro Jahr) und die Änderung der Landnutzung (2 PgC pro Jahr), zu der insbesondere die Abholzung in tropischen Regionen beiträgt [5]. Sie sind somit klein im Vergleich zu den genannten, natürlichen CO_2 -Flüssen und daher schwer zu messen. Während das Volumen der anthropogenen CO_2 -Emissionen vergleichsweise genau bekannt ist, sind alle anderen Angaben mit großen Unsicherheiten behaftet [6]. Die Details des Kohlenstoffkreislaufs sind bis heute nicht sehr gut erforscht. Es verbleibt rund die Hälfte des vom Menschen emittierten Kohlendioxids nicht in der Atmosphäre. Als Senke gelten zwar die Ozeane und die Vegetation, die zu Grunde liegende Dynamik ist allerdings im Detail nicht bekannt. Die Entschlüsselung des Kohlenstoffkreislaufs ist eine der fundamentalen Fragen der aktuellen Wissenschaft. Insbesondere die Reaktion des natürlichen Gleichgewichts auf den anthropogenen Einfluss ist weitestgehend unbekannt. Daher ist auch die Fähigkeit zur Prognose der Veränderungen und der Auswirkungen auf das Klima eingeschränkt.

Hochaufgelöste Modellierungen von Quellen, Senken und Flüssen des atmosphärischen Kohlendioxids können nur auf der Basis eines ausreichend dichten Netzes von CO_2 -

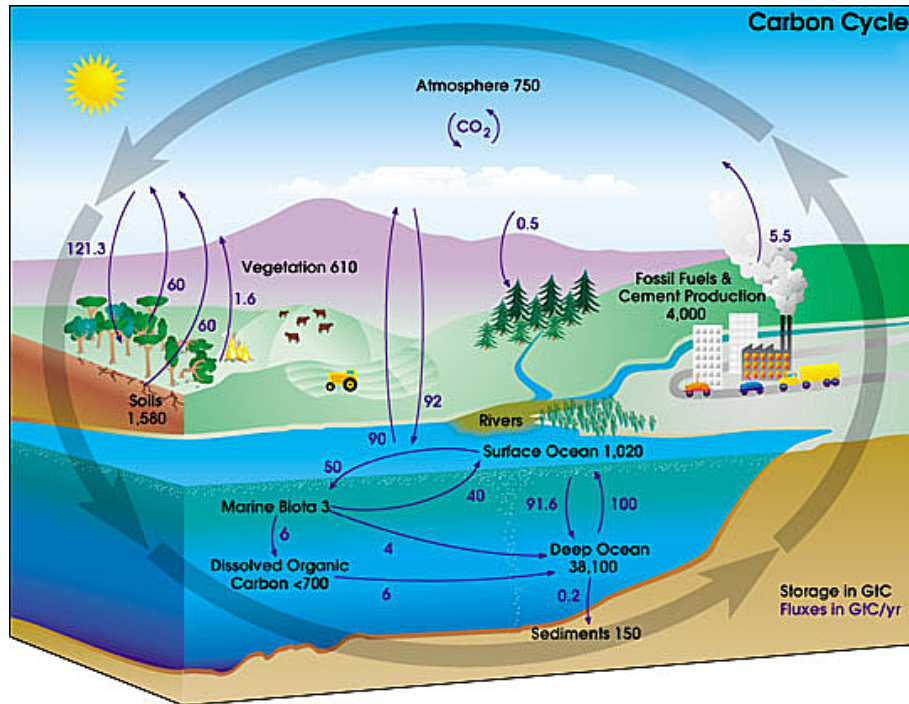


Abbildung 1: Komponenten des globalen Kohlenstoffkreislaufs: Reservoir in Pg und Flüsse in Pg pro Jahr, Quelle: NASA [3]

Messungen realisiert werden. Derzeit gibt es allerdings nur rund 100 Messstationen weltweit, die im Wesentlichen punktuelle Konzentrations-Messungen anhand von In-situ-Messmethoden durchführen. Eine detaillierte Aufschlüsselung des atmosphärischen Teils des Kohlenstoff-Kreislaufs ist damit allerdings nicht möglich [7].

Eine deutliche Erhöhung der räumlichen Auflösung und eine vollständige Erfassung der Erde lassen sich durch Satelliten gestützte Messsysteme erreichen. In von der ESA in Auftrag gegebenen Studien [8, 9] wurde u.a. die Frage untersucht, über welche Messgenauigkeit Satelliten getragene Messsysteme verfügen müssen, damit Quellen, Senken und Flüsse identifiziert werden können. Es ergab sich die sehr hohe Anforderung an die Messgenauigkeit im Bereich von besser als 3 bis 4 $\mu\text{mol}/\text{mol}$ im CO₂-Mischungsverhältnis, also eine Genauigkeit im Subprozent-Bereich.

Derzeit gibt es einige Missionen, die eine Messung von CO₂ auf der Basis Satelliten getragener Instrumente prinzipiell möglich machen. Das Spektrometer AIRS auf dem Satelliten AQUA der US-amerikanischen Raumfahrtagentur NASA sowie das Instrument IASI auf dem Satelliten Metop der europäischen Raumfahrtagentur ESA werten die thermische Infrarotstrahlung der Erde und der Atmosphäre zur Bestimmung des CO₂-Gehaltes aus [10]. Der speziell für CO₂-Messungen konzipierte NASA-Satellit OCO [11] sowie der Satellit GOSAT [12] der japanischen Raumfahrtagentur JAXA (beide geplant ab 2008) verfügen über hochauflösende Spektrometer für das nahe Infrarot und sollen die CO₂-Absorption in der von der Erde zurück gestreuten solaren Strahlung messen. Das Spektrometer SCIAMACHY auf dem ESA-Satelliten ENVISAT [13] arbeitet nach dem gleichen Prinzip, allerdings mit geringerer spektraler Auflösung.

Die genannten Systeme konnten die geforderten Genauigkeiten allerdings bislang noch

nicht nachweisen. Sie gehören zur Gruppe der passiven Instrumente. Zu den Nachteilen passiver Systeme, die die thermische Strahlung nutzen, zählt insbesondere die geringe Messempfindlichkeit in der unteren Troposphäre, also dort, wo die Quellen und Senken vorliegen [14]. Die Systeme, die die solare Strahlung nutzen, können einerseits die Erde nicht vollständig erfassen aufgrund geringer Rückstreuung in hohen Breiten und über den Ozeanen, andererseits haben sie eine große Empfindlichkeit gegenüber atmosphärischem Aerosol [15].

Eine vielversprechende Methode, die diese Nachteile nicht aufweist, ist die Fernerkundung mit aktiven Instrumenten. Derartige Systeme verfügen über eine eigene Lichtquelle. Die Sondierung der Atmosphäre mittels Lidar (**L**ight **d**etection **a**nd **r**anging) ist seit vielen Jahren ein etabliertes Verfahren zur aktiven Messung von Aerosol, Wind, Wasserdampf, Ozon, Methan und anderer Spurenstoffe [16, 17, 18]. Beim Differential-Absorptions-Lidar (DIAL) [19] kommen zwei nahe beieinander liegende Wellenlängen zum Einsatz, woraus eine vergleichsweise geringe Aerosolempfindlichkeit folgt. Des Weiteren ist bei aktiven Systemen der Absorptionsweg sehr genau bekannt. Diese Faktoren ermöglichen eine hohe Messgenauigkeit.

Bereits 1983 berichteten Bufton et al. [20] über ein Lidar-System zur Messung von atmosphärischem Kohlendioxid auf der Basis eines frequenzverdoppelten CO₂-Lasers (bei 4,8 μm). 1992 beschrieben Sugimoto et al. [21] CO₂-Messungen mit einem Raman-geshifteten Farbstofflaser (bei 2 μm), Ansmann et al. berichteten über Testmessungen mit einem Raman-Lidar [22]. Theoretische Betrachtungen der Methode, CO₂ mittels aktiver Fernerkundung zu messen, finden sich seit vielen Jahren in der Literatur [23, 24, 25], insbesondere im Hinblick auf die Möglichkeit von Satelliten getragenen Messungen.

Aktuell gibt es mehrere Ansätze zur Realisierung aktiver CO₂-Sensoren. Unterschiede bestehen in der Strahlquelle (gepulstes oder kontinuierliches Laserlicht), im Messwellenlängenbereich (1,6 μm oder 2 μm) und in der Art des Empfängers (Direktempfang oder Heterodynempfang). Welche Kombination sich für diesen Zweck als die erfolgreichste erweist, ist Gegenstand der aktuellen Forschung.

Verschiedene Forschungsinstitute entwickeln derzeit entsprechende Systeme. Es handelt sich dabei jeweils um Laborsysteme in einer frühen Entwicklungsphase. Koch et al. [26] sowie Gibert et al. [27] berichten über erste Testmessungen mit gepulsten Systemen bei 2 μm mit Heterodynempfang. Ismail et al. [28] entwickeln ein 2 μm -System mit Direktempfang. Systementwicklungen auf der Basis kontinuierlicher Laserstrahlung bei 2 μm bzw. 1,6 μm werden von Spiers et al. [29] und Kraniak et al. [30] beschrieben (s. a. Anhang A).

Es existieren derzeit aber keine operationell einsetzbaren aktiven Systeme zur Messung von atmosphärischem Kohlendioxid. Zudem erreichte bisher keiner der Prototypen die geforderte Messgenauigkeit. Daher ist es wichtig, die Messmethode weiter zu entwickeln. Dafür sind weitere theoretische und experimentelle Untersuchungen nötig sowie Neuentwicklungen von Systemen unter Ausnutzung neuester technologischer Möglichkeiten.

Aus diesem Grund ist das Ziel dieser Arbeit die Realisierung eines neuartigen Systemprototypen zur Messung von atmosphärischem CO₂ auf der Basis der DIAL-Technologie. Numerische Simulationen sollen gegenüber äußeren Einflüssen unempfindliche Messwel-

lenlängen liefern. Mit weiteren Simulationen und anhand von Testmessungen soll die Methode, insbesondere die erreichbare Messgenauigkeit und kritische Parameter, untersucht werden. Dabei wird auch auf einige Besonderheiten eines potentiellen Flugzeug getragenen Systems eingegangen, als Schritt in Richtung einer Satelliten gestützten Anwendung. Für die Laserlichtquelle soll dabei, erstmals für CO₂-Messungen, die OPO-Technologie eingesetzt werden.

Das System soll im Wellenlängenbereich bei 1,6 μm betrieben werden, nach dem Prinzip des Direktempfangs arbeiten und mit einer präzisen Wellenlängen-Stabilisierung ausgestattet werden. Ein derartiges System wurde bislang noch nicht vorgestellt. Der Wellenlängenbereich ist aufgrund der geringen Wasserdampfabsorption günstig und zudem für einen Direktempfang vorteilhaft, da die derzeit erhältlichen Detektoren für den 2 μm -Bereich vergleichsweise geringe Empfindlichkeiten aufweisen. Dasselbe gilt für die Bereiche mit größeren Wellenlängen. In Richtung kleiner Wellenlängen ist man dadurch begrenzt, dass im CO₂-Spektrum bei $< 1,4 \mu\text{m}$ keine Linien mit geeigneter Stärke existieren. Für Heterodynsysteme ergeben sich bei der Messung von Spurengasen Schwierigkeiten, insbesondere aufgrund des Laser-Speckle-Effektes [35]. Diese Aspekte führten zu der Hypothese, dass mit der gewählten Systemkonfiguration die geforderte Messgenauigkeit erreicht werden kann.

Die vorliegende Arbeit ist folgendermaßen strukturiert: Die Messmethode und die wichtigsten theoretischen Grundlagen für die numerischen Simulationen sowie für den experimentellen Aufbau werden im ersten Kapitel behandelt. Im zweiten Kapitel wird anhand von numerischen Simulationen geklärt, welche Wellenlängen für die Messung geeignet sind, um das Laborsystem darauf auslegen zu können. Dazu wurde eine Software entwickelt, die die entsprechenden Charakteristika des Messverfahrens simuliert. Zudem werden Einflüsse untersucht, die zu einer Einschränkung der Messgenauigkeit führen können. Abschließend werden daraus Vorgaben für das Messsystem abgeleitet. In Kapitel 3 wird der entwickelte experimentelle Aufbau erläutert. Wesentliche Komponenten des Laboraufbaus sind eine auf den ermittelten Wellenlängenbereich abstimmbare Laserlichtquelle und eine daran angepasste, präzise Wellenlängen-Stabilisierung. Für ein vollständiges System musste zudem eine Empfangseinheit aus Teleskop und Detektor, ein computergestütztes Steuerungs- und Datenerfassungs-System, sowie Elemente zur Kontrolle und Bewertung der Laserstrahlqualität aufgebaut werden. Schließlich wurden erstmals mit einem derartigen System erfolgreich Testmessungen durchgeführt, die im vierten Kapitel behandelt werden. Es erfolgte eine Validierung durch Vergleichsmessungen mit einem In-situ-Messgerät sowie durch Nullmessungen. Auf Basis der Simulationsroutinen wurde die zu erwartende Messgenauigkeit abgeschätzt, die in Kapitel 5 mit den tatsächlichen Abweichungen verglichen wird. Daraus und aus den Erfahrungen bei der Konfiguration des Systems werden Rückschlüsse auf kritische Elemente des Messsystems abgeleitet. Des Weiteren werden Vorschläge für zukünftige Weiterentwicklungen des Systems gegeben. Die Arbeit schließt mit einer Zusammenfassung und einem Ausblick.

Kapitel 1

Theoretische Grundlagen

1.1 Das Messprinzip von Lidar, DIAL und IPDA

Bei einem klassischen Lidar-System werden Lichtimpulse mit einer Dauer im Nanosekunden-Bereich eines starken Lasers in die Atmosphäre ausgesandt. An den Luftmolekülen und Staubteilchen der Atmosphäre wird das Licht gestreut und ein Teil der rückwärts gestreuten Photonen wird von einem Empfangssystem detektiert. Aus der Laufzeit des registrierten Lichts wird die Entfernung des streuenden Volumenelementes entlang des Messstrahls bestimmt. Mit einem derartigen System kann beispielsweise die Aerosol-Verteilung in der Atmosphäre bestimmt werden (s. Abb. 1.1) [19, 36, 37].

Zur Messung von Spurengasen wird das DIAL-Verfahren (**D**ifferential **A**bsorptions **L**idar) eingesetzt. Hierbei kommen zwei Wellenlängen zum Einsatz, wobei die eine stark vom zu messenden Spurengas absorbiert wird, während die andere die Atmosphäre davon fast unbeeinflusst passiert (s. Abb. 1.2). Aus der gemessenen Differenz der Absorptionen wird das Teilchenzahlprofil des Spurengases in der Atmosphäre entlang der Messstrecke bestimmt [19].

Eine spezielle Art eines DIAL ist das IPDA (**I**ntegrated **P**ath **D**ifferential **A**bsorption,

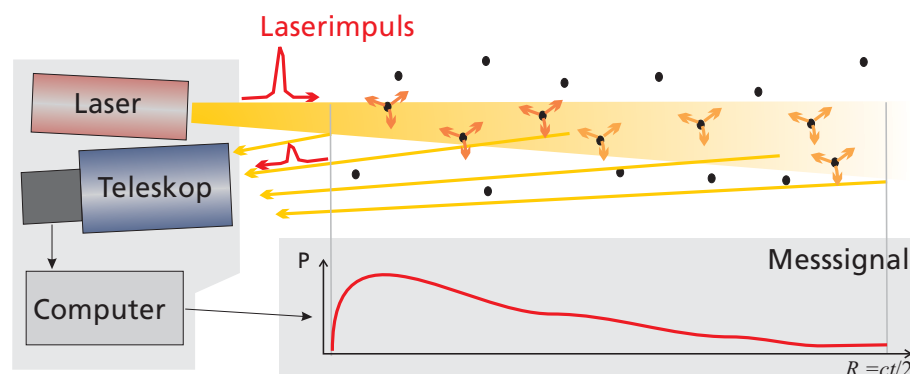


Abbildung 1.1: *Prinzip eines Lidar-Systems: Ein ausgesandter Laserimpuls wird an Luftmolekülen und Aerosolen gestreut. Ein Teil des Streulichts wird von einem Teleskop eingesammelt. Das resultierende Messsignal lässt auf die Aerosolverteilung entlang der Messstrecke schließen*

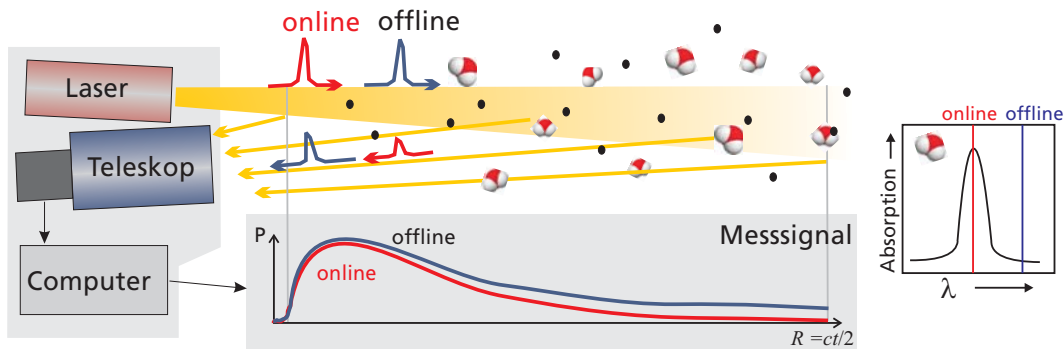


Abbildung 1.2: *Prinzip eines DIAL-Systems: Verwendung von Laserimpulsen mit zwei verschiedenen Wellenlängen λ – Online wird vom zu messenden Gas absorbiert, Offline wird davon kaum absorbiert. Aus der Differenz zwischen den Online- und Offline-Messsignalen lässt sich das Konzentrationsprofil des Gases entlang der Messstrecke bestimmen.*

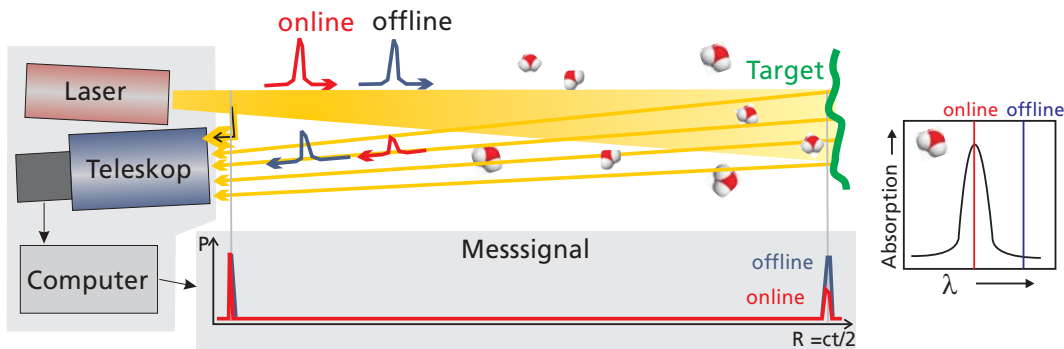


Abbildung 1.3: *Prinzip eines IPDA-Systems: Die ausgesandten Laserimpulse werden von einem Target zurückgestreut. Das Messsignal besteht aus den Impulsen der Referenzmessung (links) und Impulsen des Target-Reflexes (rechts), wobei aus der Differenz zwischen Online und Offline der Säulengehalt des zu messenden Gases berechnet werden kann.*

auch als „Hard-Target-Lidar“ bezeichnet) [29]. Dabei wird als Messsignal nicht die atmosphärische Rückstreuung der Laserimpulse sondern der Reflex eines festen Objektes („Hard Target“), wofür prinzipiell alle Objekte auf der Erdoberfläche (auch als „topografische Targets“ bezeichnet), Wasser oder gegebenenfalls auch dichte Wolken in Frage kommen. Daraus folgt allerdings, dass die Ortsauflösung innerhalb der Messstrecke entfällt und nur der gesamte Säulengehalt des zu messenden Stoffes zwischen Messgerät und Target ermittelt werden kann (s. Abb. 1.3). Die Nutzung eines Hard-Target-Reflexes hat aber den großen Vorteil, dass eine vergleichsweise hohe Signalstärke vorliegt, was eine Messung mit großer Genauigkeit ermöglicht, gerade wenn die atmosphärische Rückstreuung bei der verwendeten Wellenlänge schwach ist. Durch die gepulste Laserstrahlung bleibt der Vorteil der Entfernungsbestimmung erhalten, denn für eine hohe Messgenauigkeit ist die genaue Kenntnis der Distanz zwischen Messgerät und Target, also die Länge der Säule, unbedingt erforderlich (s. a. Abschn. 2.3.2).

Für die Messung atmosphärischen Kohlendioxids eignen sich Wellenlängen $> 1,5 \mu\text{m}$. Die atmosphärische Rückstreuung ist in diesem Wellenlängenbereich vergleichsweise gering. Daher wären für ein ortsauflösendes DIAL-System zum gegenwärtigen Stand der

Detektor-Technik eine erheblich höhere Laserleistung und ein größeres Teleskop nötig (verglichen mit bestehenden DIAL-Systemen für andere Zwecke), um die benötigte, vergleichsweise hohe Messgenauigkeit zu erreichen. Für ein IPDA-System zur Bestimmung von Säulengehalten hingegen sind die Anforderungen diesbezüglich moderat [8]. Für das im Rahmen der vorliegenden Arbeit aufgebaute Laborsystem wurde daher die Variante der IPDA-Technik gewählt. Allerdings ergeben sich bei dieser Technologie im Vergleich zur konventionellen DIAL-Technik neue Herausforderungen, die bislang nicht sehr ausführlich untersucht wurden, insbesondere in Bezug auf die geforderte hohe Messgenauigkeit. Einige dieser Aspekte werden in der vorliegenden Arbeit herausgearbeitet.

1.2 Lichtabsorption von Molekülen

Die Eigenschaft von Molekülen, elektromagnetische Strahlung auf eine für die jeweilige Spezies charakteristische Art und Weise zu absorbieren, wird bei der Fernerkundung zum Nachweis von Spurengasen in der Atmosphäre genutzt. Die zugrunde liegenden Mechanismen für die Lichtabsorption von atmosphärischem Kohlendioxid werden im Folgenden dargelegt.

1.2.1 CO₂-Übergänge im nahen Infrarot

Moleküle haben im Vergleich zu Atomen ein komplexes Absorptionsspektrum. Durch ihre räumliche Struktur verfügen sie über mehr Freiheitsgrade als Atome. Es treten neben den elektronischen Anregungen auch Molekül-Schwingungen und -Rotationen auf.

Kohlendioxid besitzt durch die symmetrische Anordnung seiner Atome kein permanentes Dipolmoment. Ohne Dipolmoment ist eine Wechselwirkung mit elektromagnetischen Feldern bezüglich Schwingungen und Rotationen nicht möglich. Durch die Molekülschwingung selbst erhält CO₂ jedoch ein dynamisches Dipolmoment und ist damit infrarot-aktiv [38]. Das dreiatomige, lineare Molekül CO₂ weist drei fundamentale Schwingungszustände auf, deren Anregung im infraroten Spektralbereich liegt. Des Weiteren treten Kombinationen aus den drei Fundamentalschwingungen auf. Bei den in dieser Arbeit betrachteten Absorptionsbanden handelt es sich um derartige Kombinationsbanden [39]. Für eine Schwingungsanregung wird mehr Energie benötigt als für eine Rotationsanregung. Daher zeigt im Schwingungs-Rotations-Spektrum jeder Schwingungsübergang eine Bande aus Linien entsprechend den Rotationszuständen (siehe Abb. 1.4).

Aus der Energiedifferenz beim Übergang vom unteren zum oberen Zustand ergibt sich die Wellenlänge λ des absorbierten Lichtquants:

$$\lambda = \frac{c}{h}(E'_{vib} - E''_{vib} + E'_{rot} - E''_{rot}) \quad (1.1)$$

mit der Lichtgeschwindigkeit c , der Planck-Konstante h , und den Energien der jeweiligen Schwingungszustände E_{vib} und Rotationszustände E_{rot} , wobei mit (") der untere und mit (') der obere Zustand bezeichnet wird.

Die Linienstärke hängt von der Übergangswahrscheinlichkeit und der Besetzung des unteren und oberen Zustands ab. Die Übergangswahrscheinlichkeit wird dabei durch das

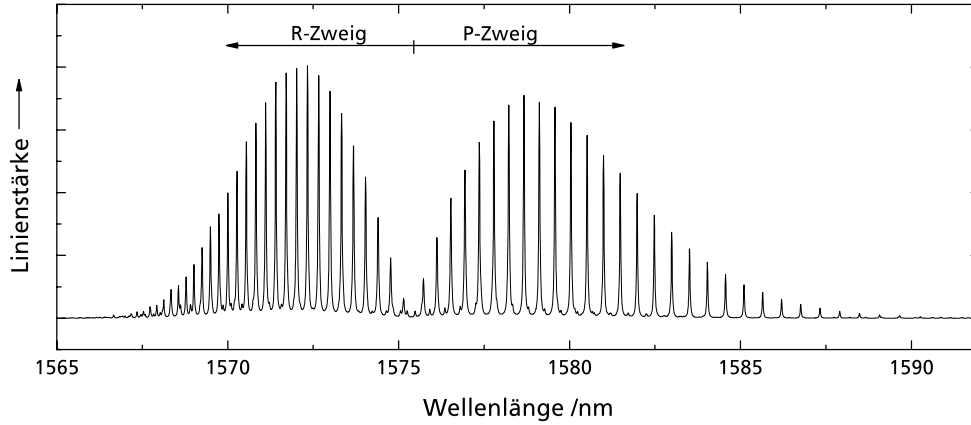


Abbildung 1.4: Schwingungs-Rotationsbande von CO_2 bei 1575 nm des Schwingungsübergangs ($22^0_1 \leftarrow 00^0_0$)

Übergangs-Dipolmatrixelement R_{ab} beschrieben [39]. Die Besetzung eines Schwingungs- oder Rotationszustands der Energie E_i ist gemäß der Boltzmann-Verteilung $\propto e^{-hcE_i/kT}$, wobei T die Temperatur und k die Boltzmannkonstante ist.

Höhere Schwingungszustände als der Grundzustand sind bei atmosphärischen Temperaturen kaum besetzt. Die hier betrachteten Übergänge finden daher aus dem Schwingungsgrundzustand (00^0_0) heraus statt. Da die nötigen Energien für Rotationsanregungen vergleichsweise klein sind, liegt eine thermische Besetzung der Rotationszustände vor. Unter diesen Bedingungen ergibt sich für einen Übergang eines Moleküls vom Zustand $|a\rangle$ nach $|b\rangle$ durch die Absorption eines Lichtquants die Linienstärke [40]:

$$S_{ab}(T) = \frac{8\pi}{3hc} \cdot \frac{1}{Q(T)} \cdot \nu_{ab} \cdot g_a \cdot e^{-hcE''_{rot}/kT} \cdot R_{ab} \quad (1.2)$$

mit der Übergangsfrequenz ν und g als Entartungsfaktor. Die Zustandssumme Q gibt die Gesamtanzahl der möglichen Zustände an. Für das lineare Molekül CO_2 ergibt sich bezüglich der Rotationen [39]:

$$Q(T) = \frac{kT}{hc B} \quad (1.3)$$

mit der Rotationskonstanten B des Moleküls.

1.2.2 Struktur des Absorptionsquerschnittes

Das Verhältnis aus der von einem Teilchen absorbierten Leistung P und der eingestrahlten Intensität I bei einer Frequenz ν wird als Absorptionsquerschnitt σ_{abs} pro Teilchen definiert [41]:

$$\sigma_{abs} = P_\nu / I_\nu \quad (1.4)$$

Als Einheit ergibt sich: $[\sigma_{abs}] = \text{m}^2$.

Reale Absorptionslinien haben folgende Charakteristika: die Wellenlänge, die Linienstärke und die Linienform. Für Gase in der Atmosphäre haben die atmosphärischen

Bedingungen einen Einfluss auf alle drei Eigenschaften. Luftdruck und Temperatur beeinflussen den Absorptionsquerschnitt, der bei einer bestimmten Wellenlänge vorliegt, maßgeblich. Durch den Druckshift werden die Linien in ihrer Wellenlänge verschoben, Stoß- und Dopplerverbreiterung nehmen Einfluss auf die Stärke und die Form. Ein Modell zur Beschreibung von Absorptionslinien im nahen Infrarot-Bereich unter atmosphärischen Bedingungen ist das *Voigt-Profil* [42]. Es ist die Faltung eines *Gauß-* mit einem *Lorentzprofil*.

Das Gaußprofil gibt die Dopplerverbreiterung wieder, die sich aus der thermischen Bewegung der Moleküle ergibt (Dopplereffekt) und in der Atmosphäre bei niedrigem Druck dominiert. Das Lorentzprofil beschreibt die Stoßverbreiterung (auch Druckverbreiterung genannt), die bei hohen Luftdrücken dominiert. Sie basiert auf dem Einfluss der Stöße auf die Lebensdauer der angeregten Zustände. Zudem tritt ein Druckshift auf. Er ist dadurch begründet, dass die beiden Energieniveaus E'' und E' des Übergangs durch die Wechselwirkung mit dem Stoßpartner verschoben werden. Dadurch ändert sich die Übergangsenergie und damit die Absorptionswellenlänge [43].

Das Voigt-Profil gibt den Absorptionsquerschnitt σ_{abs} bei der Frequenz ν an [45]:

$$\sigma_{abs}(\nu) = \sigma_0 \cdot \frac{y}{\pi} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\exp(-t^2)}{y^2 + (x - t)^2} \cdot dt \quad (1.5)$$

wobei gilt:

$$\sigma_0 = \frac{2S}{\gamma_D} \cdot \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \quad (1.6)$$

$$x = \frac{\nu - \nu_0}{\gamma_D} \cdot 2\sqrt{\ln 2} \quad (1.7)$$

$$y = \frac{\gamma_p}{\gamma_D} \cdot \sqrt{\ln 2} \quad (1.8)$$

mit:

ν_0	Frequenz der Linienmitte (in 1/s)
γ_D	Halbwertsbreite der Dopplerverbreiterung (HWHM, in cm^{-1})
γ_p	Halbwertsbreite der Druckverbreiterung (HWHM, in cm^{-1})
S	Linienstärke des molekularen Übergangs (in $\text{cm}/\text{Molekül}$)

Die Linienstärke S berechnet sich für atmosphärische Temperaturen und Übergänge im nahen Infrarot gemäß den Betrachtungen des vorigen Abschnitts. In der Literatur wird für Absorptionslinien in der Regel eine Referenz-Linienstärke S_0 bei einer Referenztemperatur T_0 angegeben [44]. Für die Berechnung von S bei einer Temperatur T folgt aus Gleichung 1.2:

$$S(T) = S_0 \left(\frac{T_0}{T} \right)^{n_1} \cdot \exp \left[\frac{E'' \cdot hc}{k} \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (1.9)$$

wobei E'' die Grundzustandsenergie des Übergangs ist (mit $[E''] = \text{cm}^{-1}$). Für lineare Moleküle wie CO_2 gilt für den Exponenten $n_1 = 1$ [25] (für nicht-lineare, wie z.B. H_2O , ergibt sich $n_1 = 3/2$ [46]).

Die Halbwertsbreite der Dopplerverbreiterung ergibt sich aus

$$\gamma_D = \frac{\nu_0}{c} \cdot \sqrt{\frac{8kT \cdot \ln 2}{m}} \quad (1.10)$$

wobei c die Lichtgeschwindigkeit und m die Masse des Moleküls ist.

Die Halbwertsbreite der Druckverbreiterung ergibt sich aus

$$\gamma_p = \left(\gamma_{air} \cdot \frac{p_{air} - p_{gas}}{p_0} + \gamma_{self} \frac{p_{gas}}{p_0} \right) \left(\frac{T_0}{T} \right)^{n_2} \quad (1.11)$$

wobei p_{gas} der Partialdruck des betrachteten Gases, p_{air} der Luftdruck und γ_{self} sowie γ_{air} die linienspezifischen Konstanten für die Verbreiterungen induziert durch die Moleküle der eigenen Spezies und der übrigen Luftmoleküle sind. Der Exponent n_2 [47] wird experimentell bestimmt und kann wie die übrigen Parameter der Literatur entnommen werden [44].

Der Druckshift verhält sich linear zum Druck und hat stets eine Rotverschiebung zur Folge:

$$\Delta\nu_0(p) = -\alpha \cdot p_{air} \quad (1.12)$$

wobei α der Druckshift-Koeffizient ist. Er wird für die hier betrachteten Absorptionslinien bei Henningsen et al. [48] angegeben.

1.3 Grundgleichungen für IPDA

1.3.1 IPDA-Prinzip

Propagiert ein Laserimpuls durch die Atmosphäre, werden die Photonen von Luftmolekülen und Aerosolen absorbiert und an ihnen gestreut, was eine Extinktion des Laserimpulses bedeutet. Für Impulse mit ausreichend geringer Intensität, wie die der hier verwendeten, wird dieser Vorgang durch das *Lambert-Beersche Gesetz* [49] wiedergegeben:

$$I(r) = I_0 \cdot e^{-\alpha r} \quad (1.13)$$

wobei I_0 die eingestrahelte, I die transmittierte Intensität des Laserimpulses, α der Extinktionskoeffizient und r die Länge der Absorptionsstrecke ist. Das Produkt $\alpha \cdot r$ bezeichnet man als *optische Dicke*. Im Allgemeinen ist der Extinktionskoeffizient abhängig von r . Für die optische Dicke ergibt sich also

$$\tau(\lambda, R) = \int_0^R \alpha(\lambda, r) \cdot dr \quad (1.14)$$

Ein IPDA-System ist auf die Rückstreuung der ausgesandten Laserimpulse durch ein Target, also einer festen Oberfläche (Erdboden, Vegetation, Gebäude usw.) angewiesen. Eine Möglichkeit zur Beschreibung der Rückstreuung durch eine flache, gleichmäßige und isotrope Oberfläche ist durch die *bidirectional reflectance distribution function* (BRDF) [50, 51] gegeben.

Für die von einem „Hard Target“ zurück gestreute und von einem Teleskop-Detektor-System empfangene Leistung P ergibt sich im Falle eines Lambert'schen Streuers [52]:

$$P(R, \lambda) = \frac{\rho}{\pi} \frac{E}{\tau_{eff}} \frac{A}{R^2} T_{opt} \cdot \exp\left(-2 \int_0^R \alpha(\lambda, r) dr\right) \quad (1.15)$$

mit

ρ	Reflektivität des Targets (dimensionslos)
E	Energie der Laserimpulse (J)
τ_{eff}	effektive Impulslänge (s)
A	Teleskopfläche (m ²)
R	Länge der Säule, also Abstand Messsystem-Target (m)
T_{opt}	Transmission aller optischen Elemente (dimensionslos)
α	Extinktionskoeffizient (m ⁻¹)

Für den Extinktionskoeffizienten α gilt

$$\alpha = \alpha_{Gas} + \alpha_R + \alpha_M \quad (1.16)$$

mit den Extinktionen α_R und α_M aufgrund von Rayleigh- und Mie-Streuung der Atmosphäre und der Absorption α_{Gas} des zu messenden Gases, gegeben durch

$$\alpha_{Gas}(\lambda, r) = N_{Gas}(r) \cdot \sigma_{abs}(\lambda, r) \quad (1.17)$$

mit

N_{Gas}	Teilchendichte des absorbierenden Gases (Teilchen/m ³)
σ_{abs}	Absorptionsquerschnitt des Gases (m ² /Teilchen)

Ein wesentlicher Bestandteil der hier beschriebenen Methode ist die *differentielle Absorption*. Dazu wird eine Wellenlänge, die im Bereich einer Absorptionslinie liegt (im Folgenden „Online“ genannt bzw. „on“ bei Indices) gewählt und eine zweite, bei der das zu messende Gas keine oder eine geringe Absorption aufweist („Offline“ bzw. „off“). Bildet man nun das Verhältnis P_{on}/P_{off} , fallen für den idealen Fall die Systemparameter und die Extinktionen heraus, die nicht auf der Absorption des zu messenden Gases beruhen. Löst man nun nach dem Exponenten auf und führt den *differentiellen Absorptionsquerschnitt*

$$\Delta\sigma = \sigma_{abs}(\lambda_{on}) - \sigma_{abs}(\lambda_{off}) \quad (1.18)$$

ein, ergibt sich:

$$\int_0^R N_{CO_2}(r) \cdot \Delta\sigma(r) \cdot dr = \frac{1}{2} \cdot \ln \frac{P_{off}}{P_{on}} \quad (1.19)$$

Die schließlich interessierende Größe ist entweder die Säulen-Teilchendichte $N_{CO_2}^{Säule}$ oder das molare Mischungsverhältnis mr_{CO_2} (in $\mu\text{mol/mol}$), das dem Verhältnis der Anzahl der Gas-Moleküle zur Gesamtzahl der Teilchen pro Volumeneinheit entspricht (es ist über die ideale Gasgleichung äquivalent zum Volumen-Mischungsverhältnis). Die entsprechenden Ableitungen werden im Folgenden betrachtet.

1.3.2 Berechnung der Teilchendichte

Die Berechnung der CO_2 -Teilchendichte der Säule aus Gleichung 1.19 hängt von der vorliegenden Mess-Konfiguration ab. Wird in horizontaler Richtung gemessen, wie es bei den in dieser Arbeit gezeigten Messungen der Fall ist, so ist $\Delta\sigma$ im Allgemeinen entlang der Messstrecke r konstant. Für die Säulen-Teilchendichte ergibt sich dann [53]

$$N_{\text{CO}_2}^{\text{Säule}} \equiv \int_0^R N_{\text{CO}_2}(r) dr = \frac{1}{2 \cdot \Delta\sigma} \cdot \ln \frac{P_{\text{off}}}{P_{\text{on}}} \quad (1.20)$$

mit der Einheit $[N_{\text{CO}_2}^{\text{Säule}}] = \text{Teilchen}/\text{m}^2$.

Misst man hingegen in vertikaler Richtung und möchte Gleichung 1.19 nach der Teilchendichte der Säule $N_{\text{CO}_2}^{\text{Säule}}$ auflösen, stellt sich das Problem, dass auch $\Delta\sigma$ von r abhängt. Daher kann ohne weitere Informationen nicht nach $N_{\text{CO}_2}^{\text{Säule}}$ aufgelöst werden. Das ist auch anschaulich plausibel: Durch die fehlende Ortsauflösung ist unbekannt, ob in der Säule viele Teilchen mit kleinem oder wenige mit großem $\Delta\sigma$ absorbieren.

Daher ist es notwendig, die relative Verteilung der Teilchen in der Säule, also eine Verteilungsfunktion $W(r)$ voranzusetzen, um den Gesamtgehalt der Säule berechnen zu können:

$$N_{\text{CO}_2}(r) = c \cdot W_{\text{CO}_2}(r) \quad \rightarrow \quad N_{\text{CO}_2}^{\text{Säule}} = c \cdot \int_0^R W_{\text{CO}_2}(r) dr \quad (1.21)$$

wobei c eine Konstante ist. Wählt man für $W(r)$ die Verteilung der Luftmoleküle, so ist c identisch mit dem Mischungsverhältnis des Gases in der Atmosphäre. Man kann Gleichung 1.19 schreiben als

$$c \cdot \int_0^R W_{\text{CO}_2}(r) \cdot \Delta\sigma(r) \cdot dr = \frac{1}{2} \cdot \ln \frac{P_{\text{off}}}{P_{\text{on}}} \quad (1.22)$$

und mit Gleichung 1.21 ergibt sich

$$N_{\text{CO}_2}^{\text{Säule}} = \frac{\int_0^R W_{\text{CO}_2}(r) dr}{2 \cdot \int_0^R W_{\text{CO}_2}(r) \cdot \Delta\sigma(r) \cdot dr} \cdot \ln \left(\frac{P_{\text{off}}}{P_{\text{on}}} \right) \quad (1.23)$$

Wählt man eine normierte Verteilungsfunktion $w(r)$ mit $\int_0^R w(r) = 1$ erhält man für die Gesamt-Teilchendichte der Säule:

$$N_{\text{CO}_2}^{\text{Säule}} = \frac{1}{2 \cdot \int_0^R w_{\text{CO}_2}(r) \cdot \Delta\sigma(r) \cdot dr} \cdot \ln \left(\frac{P_{\text{off}}}{P_{\text{on}}} \right) \quad (1.24)$$

Auf dieser Formel basiert ein Großteil der in Abschnitt 2.1 beschriebenen Simulationen.

Bestimmung von Teilsäulen

Angenommen es erfolgt eine Messung in vertikaler Richtung von oben nach unten z.B. vom Flugzeug oder Satelliten aus, um CO_2 -Quellen und -Senken in Bodennähe zu finden und zu quantifizieren. Hierbei ergibt sich die Schwierigkeit, dass dann neben der Teilchendichte gerade auch die Verteilung innerhalb der Säule $w(r)$ unbekannt bzw. das Mischungsverhältnis in der Säule nicht konstant ist. Die Verwendung von Gleichung 1.24 führt somit zwangsläufig zu Fehlern. Daher ist es notwendig, weitere Informationen zur Verfügung zu haben. Wenn man die CO_2 -Gradienten in Bodennähe erwartet und man

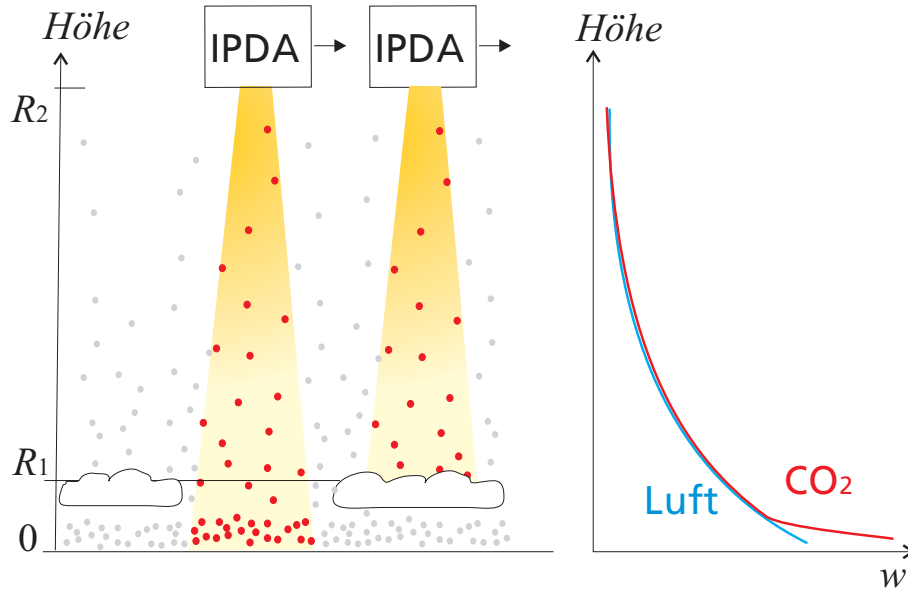


Abbildung 1.5: Nutzung von durchbrochener Bewölkung durch ein Flugzeug oder Satelliten getragenes IPDA-System. In Bodennähe liegt ein erhöhtes CO_2 -Mischungsverhältnis vor: die Verteilungsfunktion $w(r)$ der CO_2 -Moleküle weicht dort von der Verteilung der Luftmoleküle ab.

annimmt, dass das CO_2 darüber sehr gut durchmischt mit bekanntem, konstantem Mischungsverhältnis in der Atmosphäre vorliegt, kann die Säule in einen bekannten oberen und einen unbekanntem unteren Bereich unterteilt werden. Für das langlebige Gas Kohlendioxid, dessen Quellen und Senken in Bodennähe auftreten, ist das eine realistische Annahme. CO_2 -Messungen auf hohen Türmen zeigen beispielsweise, dass in Höhen ab 400 bis 500 m der starke Tagesgang der CO_2 -Konzentration, der durch die Vegetation als Quelle und Senke induziert wird, bereits sehr schwach ausgeprägt ist [54].

Für eine auf diese Weise aufgeteilte Säule ergibt sich analog zu Gleichung 1.19 Folgendes:

$$\int_0^{R_1} N_{\text{CO}_2}^{\text{unten}}(r) \cdot \Delta\sigma(r) \cdot dr + \int_{R_1}^{R_2} N_{\text{CO}_2}^{\text{oben}}(r) \cdot \Delta\sigma(r) \cdot dr = \frac{1}{2} \cdot \ln\left(\frac{P_{\text{off}}}{P_{\text{on}}}\right) \quad (1.25)$$

Für die Teilchendichte der Teil-Säule zwischen der Höhe 0 und R_1 folgt entsprechend

$$N_{\text{CO}_2}^{\text{unten}} = \frac{1}{2 \cdot \int_0^{R_1} w_{\text{CO}_2}(r) \Delta\sigma(r) dr} \cdot \left(\ln\frac{P_{\text{off}}}{P_{\text{on}}} - 2 \cdot \int_{R_1}^{R_2} N_{\text{CO}_2}^{\text{oben}}(r) \cdot \Delta\sigma(r) \cdot dr \right) \quad (1.26)$$

wobei im Intervall von R_1 bis R_2 die bekannte Teilchendichte $N_{\text{CO}_2}^{\text{oben}}(r)$ vorliegt.

Der resultierende Auswertungsfehler, der bei bodennahen CO_2 -Gradienten durch die Unkenntnis der Verteilungsfunktion entsteht, wird in Abschnitt 2.3.1 untersucht.

Durchbrochene Bewölkung

Bei IPDA-Messungen vom Flugzeug oder Satelliten aus besteht die Möglichkeit, durchbrochene Bewölkung zur Bestimmung von Teilsäulen zu nutzen [8]. Da alternativ zum

Erdboden auch eine Wolke als zurück streuendes Target wirken kann, ist es möglich, durch den Vergleich der jeweils unterschiedlich hohen Säulen eine gewisse Information über die Höhenverteilung des CO_2 -Gehaltes zu erhalten (siehe Abbildung 1.5). Es sei allerdings darauf hingewiesen, dass bei der Verwendung von Wolken als Target, insbesondere vor dem Hintergrund der hohen geforderten Messgenauigkeit, die Auswirkungen der dabei auftretenden Mehrfachstreuung genau untersucht werden sollten.

Bezüglich des im vorigen Abschnitt erläuterten Problems der Unkenntnis der Verteilungsfunktion bei bodennahen CO_2 -Gradienten, ergibt sich hier die Möglichkeit, den CO_2 -Gehalt des oberen Teils der Säule zwischen Wolke (R_1) und Messplattform (R_2) zu bestimmen. Unter der Annahme eines konstanten Mischungsverhältnisses (s. a. Fehlerabschätzung in Abschn. 2.3.1) kann Gleichung 1.24 angewendet werden. Der untere Teil der Säule zwischen Boden und Wolke wird schließlich anhand von Gleichung 1.26 berechnet. Als Verteilungsfunktion $w(r)$ kann in beiden Gleichungen die bekannte Höhenverteilung der Luftteilchen angenommen werden. Da stets nur die relative Verteilung innerhalb einer (Teil-)Säule bekannt sein muss, gilt sie in beiden Fällen.

Der Nachteil der fehlenden Ortsauflösung bei IPDA-Systemen kann durch die Nutzung von durchbrochener Bewölkung zu einem gewissen Grad ausgeglichen werden.

1.3.3 Berechnung des Mischungsverhältnisses

Zur Bestimmung von Mischungsverhältnissen wird das *mittlere gewichtete* Mischungsverhältnis $\overline{mr}_{\text{CO}_2}$ der Säule zwischen 0 und R eingeführt:

$$\overline{mr}_{\text{CO}_2} \equiv \frac{\int_0^R mr(r) \cdot N_{\text{Luft}}(r) \cdot \Delta\sigma(r) dr}{\int_0^R N_{\text{Luft}}(r) \cdot \Delta\sigma(r) dr} \quad \text{mit} \quad mr_{\text{CO}_2}(r) = \frac{N_{\text{CO}_2}(r)}{N_{\text{Luft}}(r)} \quad (1.27)$$

wobei auf die Abhängigkeit dieser Größe von der Gewichtung durch $(N_{\text{Luft}}(r) \cdot \Delta\sigma(r))$ hingewiesen werden muss.

Mit Gleichung 1.19 ergibt sich

$$\overline{mr}_{\text{CO}_2} = \frac{1}{2 \cdot \int_0^R N_{\text{Luft}}(r) \cdot \Delta\sigma(r) \cdot dr} \cdot \ln \left(\frac{P_{\text{off}}}{P_{\text{on}}} \right) \quad (1.28)$$

für den allgemeinen Fall einer vertikalen Messung, mit $[mr] = \mu\text{mol/mol}$.

Falls $\Delta\sigma$ konstant ist über r , wie es bei einer horizontalen Messung der Fall ist, vereinfacht sich die Gleichung zu

$$mr_{\text{CO}_2} = \frac{1}{2 \cdot N_{\text{Luft}} \cdot \Delta\sigma \cdot R} \cdot \ln \left(\frac{P_{\text{off}}}{P_{\text{on}}} \right) \quad \text{mit} \quad mr_{\text{CO}_2} = \frac{\int_0^R N_{\text{CO}_2}(r) \cdot dr}{\int_0^R N_{\text{Luft}}(r) \cdot dr} \quad (1.29)$$

Diese Beziehung wurde für die Auswertung der in Kapitel 4 gezeigten IPDA-Messungen verwendet.

Bei der Berechnung von Mischungsverhältnissen ist es also nötig, die Teilchendichte der Luft zu kennen. Hinzu kommt, dass man das Mischungsverhältnis häufig auf trockene Luft bezieht. Erst so werden die gewonnenen Werte vergleichbar, da der Wasserdampf in der Atmosphäre eine sehr variable Größe ist. Dafür muss auch der Wasserdampf-Anteil der Luft bekannt sein.

Analog zur Berechnung der Teilchendichte ergibt sich für das (konstant angenommene) Mischungsverhältnis der *Teilsäule* zwischen der Höhe 0 und R_1 mit bekanntem (konstanten) Mischungsverhältnis $mr_{CO_2}^{oben}$ zwischen R_1 und R_2 Folgendes:

$$mr_{CO_2}^{unten} = \frac{1}{2 \cdot \int_0^{R_1} N_{Luft}(r) \cdot \Delta\sigma(r) dr} \cdot \left(\ln\left(\frac{P_{off}}{P_{on}}\right) - mr_{CO_2}^{oben} \cdot 2 \int_{R_1}^{R_2} N_{Luft}(r) \cdot \Delta\sigma(r) dr \right) \quad (1.30)$$

1.3.4 Temperaturabhängigkeit

Die Messmethode weist aufgrund zweier Effekte eine Temperaturabhängigkeit auf. Zum einen ist der Absorptionsquerschnitt der Linie temperaturabhängig, wie in Abschnitt 1.2.2 gezeigt wurde, zum anderen wirkt sich bei der Bestimmung des Mischungsverhältnisses die Tatsache aus, dass die Teilchenzahl eines Gases pro Volumenelement gemäß der *idealen Gasgleichung* abhängig von der Temperatur ist: $N_{Gas} = p_{Gas}/(k \cdot T)$. Für die Auswertung der Messdaten wird daher in jedem Fall ein Temperaturprofil entlang der Messstrecke benötigt. Durch die Wahl einer geeigneten Absorptionslinie kann die Temperaturempfindlichkeit allerdings minimiert werden. Im gleichen Zug wird auch die Anforderung an die Genauigkeit des benötigten Temperaturprofils minimiert.

Browell et al. [46] untersuchten die Temperaturempfindlichkeit für eine DIAL-Messung von atmosphärischem Wasserdampf. Menzies et al. [25] behandelten den Effekt in Bezug auf die Messung von atmosphärischem Kohlendioxid. Für eine Vorauswahl von geeigneten Absorptionslinien lässt sich eine Bedingung für eine minimale Temperaturabhängigkeit berechnen. Für eine Bestimmung der *Teilchendichte* nimmt man an, dass

$$\frac{\partial N_{CO_2}}{\partial T} \approx \frac{\partial \Delta\sigma}{\partial T} \approx \frac{\partial \sigma_{on}}{\partial T} \quad (1.31)$$

gilt. Für den Online-Absorptionsquerschnitt σ_{on} im Linienmaximum kann man nun unter der Annahme, dass im Wesentlichen die Lorentzverbreiterung wirksam ist (was in Bodennähe der Fall ist), ansetzen [46]

$$\sigma_{on}(T, p) = S(T) \cdot \frac{1}{\pi \cdot \gamma_p(T, p)} \quad (1.32)$$

wobei die Linienstärke $S(T)$ durch Gleichung 1.9 und die Lorentzverbreiterung γ_p durch 1.11 gegeben sind. Man kann also schreiben

$$\sigma_{on}(T) = C \cdot T^{n_2 - n_1} \cdot \exp\left(\frac{E''}{k} \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T}\right)\right) \quad (1.33)$$

wobei in C alle Konstanten zusammengefasst sind. Die minimale Temperaturempfindlichkeit ergibt sich nun aus

$$\frac{\partial \sigma_{on}(T)}{\partial T} = 0 \quad \Leftrightarrow \quad \boxed{E'' = (n_1 - n_2) \cdot kT} \quad (1.34)$$

für die Messung der Teilchendichte.

Bei der Messung des *Mischungsverhältnisses* verhält es sich anders. In diesem Fall muss die Temperaturempfindlichkeit des Produkts ($N_{Luft} \cdot \sigma_{on}$) minimiert werden:

$$\frac{\partial N_{CO_2}}{\partial T} \approx \frac{\partial(N_{Luft} \cdot \sigma_{on})}{\partial T} \quad (1.35)$$

wobei $N_{Luft} = p/kT$. Hierbei geht man davon aus, dass sich an der Gewichtung von $\Delta\sigma$ entlang r durch N_{Luft} (s. Integral in Gleichung 1.28) bei kleinen Abweichungen der Temperatur nichts ändert. Analog zu oben ergibt sich

$$N_{Luft}(T) \cdot \sigma_{on}(T) = C \cdot T^{n_2-n_1-1} \cdot \exp\left(\frac{E''}{k} \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T}\right)\right) \quad (1.36)$$

und es folgt

$$\frac{\partial(N_{Luft} \cdot \sigma_{on})}{\partial T} = 0 \quad \Leftrightarrow \quad \boxed{E'' = (n_1 - n_2 + 1) \cdot kT} \quad (1.37)$$

für die Messung des Mischungsverhältnisses.

Für die Minimierung der Temperaturempfindlichkeit ist es also entscheidend, ob die Teilchendichte oder das Mischungsverhältnis bestimmt werden soll. Berechnet man die Teilchendichte gemäß Gleichung 1.24, so wirkt sich im Wesentlichen die Temperaturabhängigkeit von $\Delta\sigma(r)$ aus, die Verteilungsfunktion $w(r)$ ist im Vergleich nur schwach abhängig. Hierfür ist eine Linie auszuwählen, deren $\Delta\sigma(\lambda)$ im Bereich der Messwellenlängen möglichst wenig temperaturempfindlich ist (s. a. Abb. 2.5). Mit $n_1 = 1$ [25] und $n_2 \approx 0,7$ [44] für die CO_2 -Linien ergibt sich für die optimale Grundzustandsenergie gemäß Gleichung 1.34

$$E'' \approx 60 \text{ cm}^{-1} \quad (1.38)$$

für die Messung der Teilchendichte.

Anders verhält es sich bei der Berechnung des Mischungsverhältnisses mit Gleichung 1.28. Die Teilchendichte $N_{Luft}(r)$ ist stark abhängig von der Temperatur. Dieser Effekt kann jedoch kompensiert werden, indem man eine Absorptionslinie wählt, die eine Temperaturabhängigkeit zeigt, die sich genau umgekehrt verhält. So können für das Mischungsverhältnis ähnlich geringe Temperaturempfindlichkeiten erreicht werden wie für die Teilchendichte. Für die optimale Grundzustandsenergie ergibt sich hier aus Gleichung 1.37

$$E'' \approx 230 \text{ cm}^{-1} \quad (1.39)$$

Diese Ergebnisse gelten allerdings nur für die Temperaturunempfindlichkeit des Linienmaximums. Auch die äußeren Bereiche der Linienflanken, also auch die, in denen die Offline-Wellenlängen liegen, weisen eine E'' -abhängige Temperaturempfindlichkeit auf. Das Optimum für den differentiellen Absorptionsquerschnitt kann also von den hier berechneten Werten abweichen. Zudem können in den Bereichen, die für die Offline-Wellenlängen in Frage kommen, schwächere Linien liegen, die ebenfalls eine Temperaturabhängigkeit aufweisen. Genauere Aussagen können mit numerischen Simulationen getroffen werden (siehe Kapitel 2). Liegt die Online-Wellenlänge im Bereich der Linienflanke, so muss zusätzlich die Form der Absorptionslinie berücksichtigt werden, die ebenfalls temperaturabhängig ist (vgl. Gl. 1.5). Hier ergeben sich für die Messung der Teilchendichte bzw. für die Bestimmung des Mischungsverhältnisses jeweils größere optimale Werte für E'' . Sie wurden in Abschnitt 2.2.3 mittels numerischer Simulationen bestimmt.

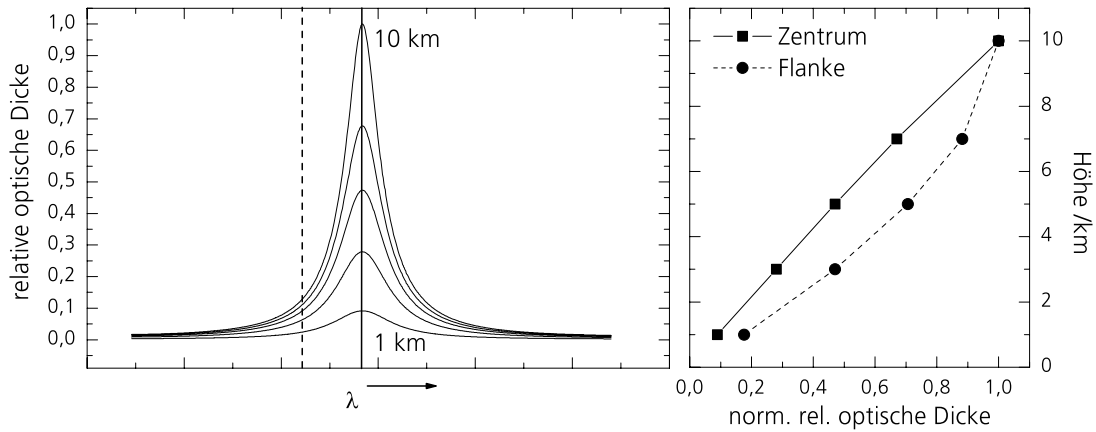


Abbildung 1.6: links: spektrale Verteilung der optischen Dicke jeweils für die gesamte Säule vom Boden bis in 1, 3, 5, 7 und 10 km Höhe; rechts: Zunahme der optischen Dicke mit der Höhe im Linienzentrum und in der Flanke (normiert) (Ergebnis aus Simulationsrechnungen, vgl. Kapitel 2)

1.3.5 Nutzung eines Linienmaximums oder einer Linienflanke

Durch die Druck- und Temperaturabhängigkeit des Absorptionsquerschnittes ist die spektrale Verteilung der optischen Dicke einer Absorptionslinie für eine vertikale Säule stark höhenabhängig, was in Abbildung 1.6 deutlich wird. Es ist zu sehen, dass die verschiedenen Bereiche der Linie sich mit der Höhe der Säule unterschiedlich verhalten. Die optische Dicke nimmt im Linienzentrum mit der Höhe in großen Höhen stärker zu als im unteren Bereich, in den Flanken hingegen wächst sie unten stark und in größerer Höhe schwächer.

Das führt dazu, dass die optische Dicke in verschiedenen Höhenbereichen der Säule unterschiedlich empfindlich auf Variationen in der Teilchenzahl reagiert, was die Messbarkeit dieser Variationen beeinflusst. Das kann ausgenutzt werden, wenn man kleine Gradienten des zu messenden Gases in bodennahen Bereichen der Atmosphäre aus großer Höhe heraus detektieren möchte. Wird Online in die Linienmitte gesetzt, erfolgt eine Gewichtung der höheren Bereiche der Säule. Dadurch können die Signale kleiner Gradienten in Bodennähe durch das Rauschen des Messsignals maskiert werden. Wählt man hingegen die Linienflanke als Online-Wellenlänge, liegt das Gewicht mehr auf den bodennahen Schichten, d.h. die Messempfindlichkeit für diesen Bereich steigt. Von Menzies et al. [55] wurde dieser Effekt unterschiedlicher Gewichtungen für Stickstoffmonoxid und Ozon betrachtet.

Abbildung 1.7 zeigt die Verteilung der optischen Dicke und damit die Gewichtung in einer 10 km hohen Säule für CO_2 . Die Auswirkung der verschiedenen Gewichtungen ist anhand von Gleichung 1.26 ersichtlich:

$$N_{\text{CO}_2}^{\text{unten}} = \frac{1}{2 \cdot \int_0^{R_1} w_{\text{CO}_2}(r) \Delta\sigma(r) dr} \cdot \left(\ln \frac{P_{\text{off}}}{P_{\text{on}}} - 2 \cdot \int_{R_1}^{R_2} N_{\text{CO}_2}^{\text{oben}}(r) \cdot \Delta\sigma(r) \cdot dr \right)$$

Falls der obere Teil der Säule zwischen R_1 und R_2 eine relativ kleine optische Dicke

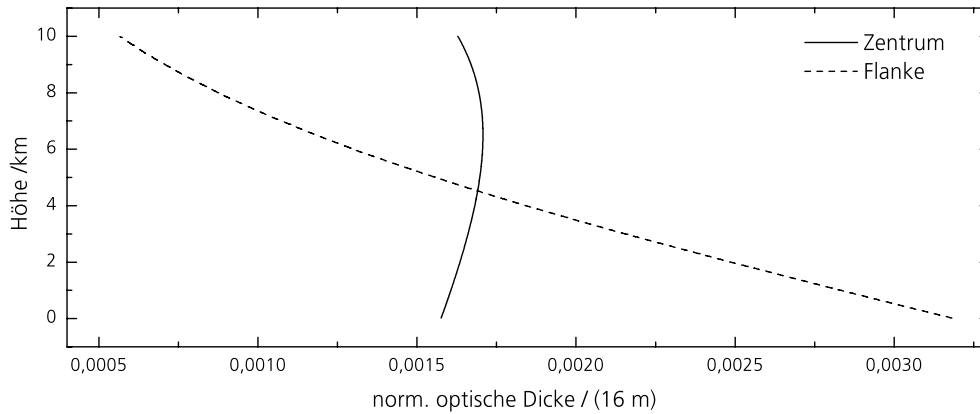


Abbildung 1.7: *Beispiel für die Gewichtung der Messempfindlichkeit für CO_2 innerhalb einer 10 km-Säule, repräsentiert durch die Verteilung der optischen Dicke innerhalb der Säule; die optische Dicke der Gesamtsäule ist dabei auf 1 normiert (Ergebnis aus Simulationsrechnungen, vgl. Kapitel 2)*

hat (zweiter Term in der Klammer), so wird vom Logarithmus des Messsignals ein geringer Betrag abgezogen. Das Messsignal ist also von der optischen Dicke des unteren Teils der Säule dominiert, d.h. es ist dort empfindlich. Teilchenzahlvariationen in Bodennähe bewirken dadurch stärkere Signaländerungen (im Verhältnis zum statistischen Rauschen, das den Messwerten P stets überlagert ist) als bei einer hohen optischen Dicke im oberen Teil der Säule.

1.4 Grundlagen der Frequenzkonversion

Die Effekte der *nichtlinearen Optik* sind Grundlage für die in dieser Arbeit realisierte Methode der Frequenzkonversion von Laserlicht mittels eines OPO-Systems zur Erzeugung der definierten Online- und Offline-Messwellenlängen. In den folgenden Abschnitten werden wichtige für den experimentellen Aufbau relevante physikalische Aspekte dieser Methode dargelegt.

1.4.1 Nichtlineare Prozesse

Polarisation dielektrischer Medien

Dielektrische Medien werden durch elektrische Felder polarisiert. Bei unpolaren Stoffen bedeutet das, dass negative Ladungen gegenüber positiven Ladungen des nichtleitenden Mediums durch das elektrische Feld \vec{E} verschoben werden, also die Elektronenhülle gegenüber den Atomkernen (elektronische Polarisation) oder die positiv geladenen Ionen eines Kristalls gegenüber den negativ geladenen (ionische Polarisation) [56]. Ist das Material elektromagnetischer Strahlung ausgesetzt, oszillieren die Ladungen angeregt durch das oszillierende elektrische Feld $\vec{E}(t)$. Bei schwacher Intensität oszillieren die Ladungen harmonisch, d.h. die Polarisation \vec{P} des Mediums ist proportional zu \vec{E} . Bei stärkerer In-

tensität, die mit Laserlicht zu erreichen ist, ist die Antwort des Mediums nicht mehr linear und zur Beschreibung der Polarisation kann \vec{P} als Taylorreihe entwickelt werden [57]:

$$\vec{P} = \underbrace{\varepsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}}_{\text{linear}} + \underbrace{\varepsilon_0 \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \dots}_{\text{nichtlinear}} \quad (1.40)$$

ε_0 ist die dielektrische Permeabilität des Vakuums und $\chi^{(n)}$ der Tensor n-ter Ordnung der dielektischen Suszeptibilität [58].

Der lineare Term der Polarisation beschreibt die Ausbreitung der Wellen im Medium, also Phänomene wie die Lichtbrechung oder die Wellenlängendispersion. Das sind Effekte bei denen keine Kopplung zwischen verschiedenen \vec{E} -Feldern stattfindet. Die nichtlineare Antwort des Mediums hingegen ermöglicht die Wechselwirkung von elektrischen Feldern unterschiedlicher Frequenzen, d.h. es kann ein Energieaustausch zwischen ihnen stattfinden.

Die im quadratischen Term von \vec{P} erscheinenden weiteren \vec{E} können die Wechselwirkung zwischen *drei* elektromagnetischen Wellen erklären, also Effekte wie Frequenzverdopplung (SHG), Summen- (SFG) und Differenzfrequenz-Mischung (DFG) und die für die hier betrachtete Anwendung wesentliche parametrische Verstärkung (OPA) bzw. Oszillation (OPO).

Die Terme höherer Ordnung sind nur bei hinreichend starken \vec{E} wirksam, da der Betrag der Elemente des Tensors $\chi^{(n)}$ mit steigender Ordnung stark fällt. Die Form von χ wird durch die innere Symmetrie des Mediums beeinflusst. Terme gerader Ordnung existieren nur für Medien ohne Inversionssymmetrie. Daher scheiden für die parametrische Oszillation isotrope Flüssigkeiten oder Gase aus. Die benötigte Anisotropie des Mediums findet sich in nicht-zentrosymmetrischen Kristallen [61].

Der Suszeptibilitätstensor zweiter Ordnung wird in der Regel durch den nichtlinearen optischen Tensor $d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)}$ ersetzt [61]. Für eine gegebene experimentelle Anordnung ist es üblich, den skalaren *effektiven nichtlinearen Koeffizienten* d_{eff} anzugeben, der von der Orientierung des Kristalls bezüglich der einfallenden Strahlung und deren Polarisation abhängt. Er kann der Literatur entnommen werden [62].

Die gekoppelten Wellengleichungen

Zur Beschreibung der Wechselwirkung zwischen den verschiedenen elektromagnetischen Wellen geht man von den Maxwell-Gleichungen aus. Führt man \vec{P} als Quellterm ein, ergibt sich für das von der Polarisation im nichtleitenden, unmagnetischen Medium erzeugte elektrische Feld \vec{E} [63]

$$\nabla^2 \vec{E} = \mu_0 \sigma \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \mu_0 \varepsilon \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (1.41)$$

mit der Permeabilitätskonstanten μ_0 des Vakuums, der Dielektrizitätskonstanten ε des Mediums und der Leitfähigkeit σ .

Löst man diese Differential-Gleichung für eine Wellenausbreitung in z -Richtung und unter der hier erfüllten Annahme der in der Literatur als „SVAA“ (slowly varying amplitude approximation) bezeichneten Näherung [63, 64] (d.h. die Amplitude ändert sich

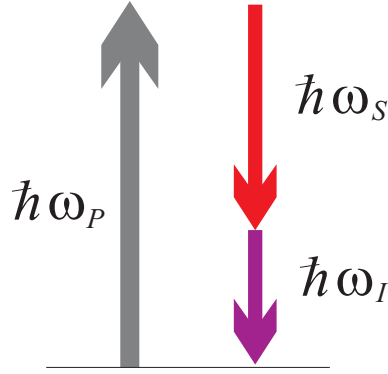


Abbildung 1.8: Erzeugung von Signal- und Idler-Photonen aus einem Pumpphoton

mit z nur wenig), ergeben sich die drei gekoppelten Amplitudengleichungen für die drei Frequenzen ω_x

$$\begin{aligned}\frac{\partial E_1}{\partial z} &= -\alpha_1 E_1 + \frac{i\omega_1^2}{k_1 c^2} K d_{eff} E_3 E_2^* \exp(i\Delta k z) \\ \frac{\partial E_2}{\partial z} &= -\alpha_2 E_2 + \frac{i\omega_2^2}{k_2 c^2} K d_{eff} E_3 E_1^* \exp(i\Delta k z) \\ \frac{\partial E_3}{\partial z} &= -\alpha_3 E_3 + \frac{i\omega_3^2}{k_3 c^2} K d_{eff} E_1 E_2 \exp(i\Delta k z)\end{aligned}\quad (1.42)$$

Als Phasendifferenz (phase mismatch) wird

$$\Delta k = k_3 - k_2 - k_1 \quad (1.43)$$

mit den Wellenzahlen k_i eingeführt. Der Absorptionskoeffizient α gibt die linearen Verluste im Kristall wieder. Die Frequenzen ω sind über die Beziehung

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \quad (1.44)$$

miteinander gekoppelt. Die drei Gleichungen beschreiben jeweils die Änderungsraten der Feldamplituden mit z bei einer Frequenz als Funktion der Amplituden der anderen zwei Frequenzen sowie der Phasendifferenz. Sie gelten für alle 3-Wellen-Mischprozesse.

Anschaulich betrachtet, geschieht Folgendes: Durch Überlagerung zweier Felder in einem nichtlinearen Medium entsteht ein drittes Feld. Im Falle der parametrischen Verstärkung werden die drei Wellenlängen als Pump- (p), Signal- (s) und Idlerstrahlung (i) bezeichnet, die über die Energieerhaltung (Glg. 1.44) miteinander gekoppelt sind. Die Signal- und Idler-Verstärkung kann auch dann stattfinden, wenn beide Felder zu Beginn des Prozesses nicht vorliegen. Dieser startet dann aus der *parametrischen Fluoreszenz*, d.h. durch die Wechselwirkung des Pumpfeldes mit den Vakuumfeldern [58].

Im Photonenbild kann die Verstärkung der Signal- und Idlerfelder auf Kosten des Pumpfeldes als Erzeugung der energieärmeren Signal- und Idler-Photonen durch die Vernichtung eines energiereicheren Pump-Photons betrachtet werden (s. Abb. 1.8).

1.4.2 Phasenanpassung

In einem azentrischen Kristall treten unter Einfluss intensiver Strahlung im Prinzip alle Mischungsprozesse gleichzeitig auf. Je nach Konfiguration kann jedoch ein Prozess bevor-

zugt werden. Für einen effizienten Energieaustausch muss die Phasenanpassungsbedingung $\Delta k = 0$ gelten, was der *Impulserhaltung* der Photonen entspricht. Die Bedingung $\omega_p = \omega_s + \omega_i$ stellt die *Energieerhaltung* der Photonen dar.

Doppelbrechung und Winkelphasenanpassung

Anisotrope Kristalle bieten durch ihre Eigenschaft der Doppelbrechung die Möglichkeit, eine Phasenanpassung zu erreichen. Dadurch, dass für unterschiedlich polarisierte Wellen verschiedene Brechungsindices vorliegen, können geeignete Konfigurationen gefunden werden, bei denen sich die wechselwirkenden Wellenlängen gleichphasig im Kristall ausbreiten. In Medien mit normaler Dispersion ist die Phasenanpassungsbedingung nicht erfüllbar. Mit $k = n\omega/c$ lautet sie für kollineare Wellen:

$$n_p \omega_p = n_s \omega_s + n_i \omega_i \quad (1.45)$$

da $n_p > n_s > n_i$ gilt. In anisotropen Kristallen findet eine Wellenausbreitung nur mit Wellen statt, die in zwei erlaubten, zueinander senkrecht stehenden Richtungen polarisiert sind. Einfallende Wellen, die nicht in einer der beiden Richtungen polarisiert sind, werden in die entsprechenden orthogonalen Anteile zerlegt. In uniaxialen Kristallen werden Strahlen, deren Polarisation senkrecht auf der optischen Achse (s.u.) des Kristalls steht, als ordentliche (o-) Strahlen bezeichnet, da ihr Brechungsindex n_o nicht von der Ausbreitungsrichtung abhängt. Strahlen, deren Polarisationrichtung in der Ebene ihres Wellenvektors \vec{k} und der optischen Achse liegt, bezeichnet man als außerordentliche Strahlen, da ihr Brechungsindex eine Funktion des Winkels ϑ zwischen der optischen Achse und \vec{k} ist. Es gilt [63]:

$$n_e(\vartheta) = \frac{n_e n_o}{\sqrt{n_o^2 \sin^2 \vartheta + n_e^2 \cos^2 \vartheta}} \quad (1.46)$$

Die optischen Achsen von Kristallen entsprechen denjenigen Einfallrichtungen, für die der Brechungsindex unabhängig von der Polarisationsrichtung ist. Es gibt ein- und zweiachsige Kristalle. Für einachsige Kristalle gilt $n_x = n_y = n_o$ und $n_z = n_e$, wobei x , y und z den kristallografischen Achsen entsprechen. Für zweiachsige Kristalle, wie das in dieser Arbeit verwendete KTP, ist die Situation komplizierter, da es drei verschiedene Brechungsindices n_x , n_y und n_z gibt. Eine allgemeine Abhandlung über biaxiale Kristalle ist bei Hobden [65] gegeben. Beschränkt man die Ausbreitung der Wellen allerdings auf eine Ebene (hier die x-z-Ebene) verhält sich der Kristall dort wie ein uniaxialer Kristall [66] mit o-Strahlen bei Polarisierung in y-Richtung und e-Strahlen bei Polarisierung in der x-z-Ebene.

Für *negative* doppelbrechende uniaxiale Kristalle gilt $n_e \leq n_e(\vartheta) \leq n_o$ und für *positive* $n_o \leq n_e(\vartheta) \leq n_e$. KTP ist positiv doppelbrechend.

Man unterscheidet zwischen mehreren Typen der Winkelphasenanpassung. Bei Typ I sind die Signal- und Idler-Wellen in der gleichen Ebene polarisiert, bei Typ II senkrecht zueinander. In dieser Arbeit wurde eine Typ II Phasenanpassung in der x-z-Ebene des KTP-Kristalls verwendet, wobei die Pump-, Signal- und Idlerstrahlen o-,o- und e-polarisiert sind.

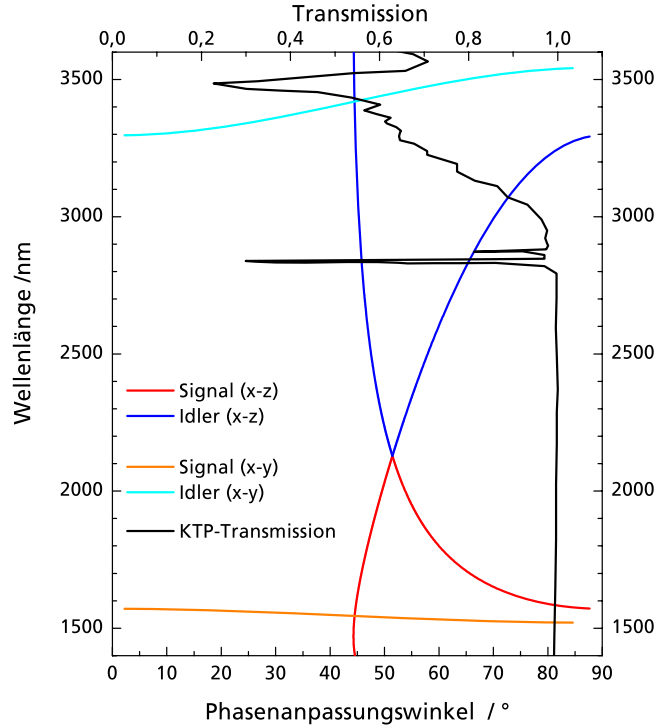


Abbildung 1.9: Berechnete Durchstimmkurven der Signal und Idlerwellenlängen für KTP in Abhängigkeit vom Phasenanpassungswinkel für die x - y -Ebene und für die x - z -Ebene (Sellmeierkoeffizienten aus [67]); zudem ist das Spektrum der KTP-Transmission pro 1 cm Kristalllänge dargestellt [68]

Die Winkelphasenanpassung erlaubt es, bei fester Pumpwellenlänge die erzeugten Signal- und Idler-Wellenlängen kontinuierlich über den Phasenanpassungswinkel über weite Bereiche durchzustimmen. Ein Beispiel hierzu ist in Abbildung 1.9 zu sehen.

Ein Nachteil dieser Methode ist, dass bei den außerordentlichen Strahlen die Ausbreitungsrichtung ihrer Phase \vec{k} im Allgemeinen nicht mit der Richtung des Energieflusses \vec{S} übereinstimmt. Bei den ordentlichen Strahlen sind \vec{k} und \vec{S} stets parallel. Daher laufen die o- und e-Strahlen, obwohl ihre Phasen kollinear verlaufen, in einem doppelbrechenden Kristall räumlich auseinander. Das wird als *walk-off-Effekt* bezeichnet. Der walk-off-Winkel ρ hängt von ϑ ab:

$$\tan \rho = \frac{((n_o/n_e)^2 - 1) \tan \vartheta}{1 + (n_o/n_e)^2 \tan^2 \vartheta} \quad (1.47)$$

Der walk-off-Effekt vermindert die Wechselwirkungslänge der Strahlen im Kristall und begrenzt dadurch die Effizienz der Frequenzkonversion.

Die Phasenanpassungsbedingung $\Delta k = 0$ ist für reale Laserstrahlen nie vollständig erfüllt. Für gegebene Konfigurationen können *Akzeptanzbandbreiten* für folgende Größen berechnet werden [62]: Phasenanpassungswinkel (Winkelakzeptanz), spektrale Breite der Pumpstrahlung (Bandbreitenakzeptanz) und Abhängigkeit von der Kristall-Temperatur (Temperaturakzeptanz).

Die Winkelphasenanpassung ist die am häufigsten verwendete Methode der Phasenanpassung. Sie bietet den größten Durchstimmbereich. Weitere Möglichkeiten sind beispiels-

weise durch Anlegung eines elektrischen Feldes E sowie durch die Variation der Kristalltemperatur T gegeben, da die Brechungsindices n_o und n_e eine Funktion von T und E sind.

Eine weitere Methode für einen effizienten Energieaustausch ist die Quasi-Phasenanpassung (QPM), die bereits in den 60er Jahren vorgeschlagen wurde [69]. Hierbei ist dem nicht-linearen Medium eine periodische Struktur implementiert, die die Phasenfehlanpassung korrigiert [70].

Nicht-kritische Phasenanpassung

Eine Besonderheit ergibt sich für den Fall, dass $\vartheta = 0^\circ$ oder $\vartheta = 90^\circ$ [63]. An dieser Stelle wird nach Gleichung 1.47 der walk-off-Winkel $\rho = 0$. Daher ist zum einen die Wechselwirkungslänge im Kristall nicht mehr beschränkt, was einen positiven Einfluss auf die Strahlqualität der erzeugten Wellenlänge hat. Zum anderen ist hier die Winkelakzeptanz am größten [71] (daher rührt der Name „nicht-kritisch“ – ansonsten spricht man von kritischer Phasenanpassung). Des Weiteren ist der Wert von d_{eff} in dieser Konfiguration im Allgemeinen am höchsten, verglichen mit einer kritischen Phasenanpassung (z.B. bei der verwendeten Konfiguration), was eine effizientere Wellenlängenkonversion bedeutet [72].

Eine derartige Konfiguration wurde für den im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten OPO verwendet (s. Kap. 3).

Durch den festgelegten Winkel ϑ sind die Signal- und Idler-Wellenlängen durch die Pumpwellenlänge und den Kristalltyp festgelegt. Eine Durchstimmung der erzeugten Wellenlänge ist daher neben der Änderung der Pumpwellenlänge nur durch eine Variation der Kristalltemperatur, durch Anlegen eines elektrischen Feldes oder durch eine nicht-kollineare Konfiguration möglich.

Nicht-kollineare Konfiguration

Bei einer nicht-kollinearen Phasenanpassung liegen die Wellenvektoren \vec{k}_p , \vec{k}_s und \vec{k}_i nicht parallel vor [63]. Bei erfüllter Phasenanpassungsbedingung $\Delta\vec{k} = 0$ ergeben sich daher winkelabhängig andere Wellenlängenkombinationen im Vergleich zum kollinearen Fall. Boeuf et al. [73] stellen eine Methode zur Berechnung der Charakteristik der nicht-kollinearen Phasenanpassung vor. Seiter et al. [74] beschreiben eine Wellenlängenerzeugung mittels Differenzfrequenz-Mischung mit nicht-kollinearer Phasenanpassung.

Liegt eine nicht-kritische Phasenanpassung vor, bietet diese Methode eine zusätzliche Möglichkeit der Feinabstimmung der erzeugten Wellenlänge. Daher wurde sie bei dem im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten OPO-System eingesetzt (s. Kap. 3).

1.5 Optisch parametrischer Oszillator (OPO)

Ein OPO-System nutzt die beschriebenen nichtlinearen Effekte zur Frequenzkonversion. Er kann aus einer festgelegten Pumpwellenlänge Ausgangsstrahlungen erzeugen, die über einen weiten Frequenzbereich durchstimmbar sind. Verschiedene Systeme decken den Spektralbereich vom nahen Ultraviolett bis zum mittleren Infrarot ab [75]. Erstmals wurde

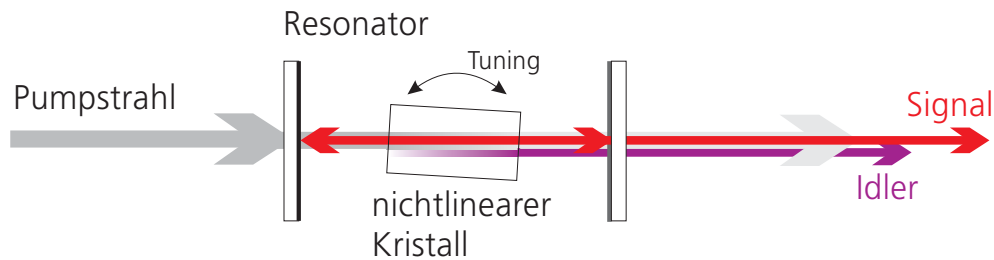


Abbildung 1.10: *Schema eines für die Signal-Wellenlänge einfach resonanten OPO: lineare Resonatoranordnung aus zwei Spiegeln (links: hochreflektierend, rechts: Auskoppelspiegel mit niedrigerer Reflektivität) mit eingebettetem nichtlinearem Kristall; durch die nichtlinearen Effekte werden Signal- und Idler-Wellen unter Abbau der Pumpwelle erzeugt*

ein OPO 1965 experimentell realisiert [76]. Der erste OPO für kontinuierliche Laserstrahlung wurde 1968 beschrieben [77]. Auch zur Erzeugung ultrakurzer Laserimpulse eignet sich diese Technik [78]. In der Molekülspektroskopie dient sie als leistungsfähige Methode der Lichterzeugung [79].

1.5.1 Prinzip

Erreicht die zur Verfügung stehende Pumpstrahlung die für die oben beschriebene optisch parametrische Verstärkung (OPA) nötigen Feldstärken nicht, wie es bei Laserimpulslängen im Nanosekundenbereich für die hier verwendeten Impulsenergien der Fall ist, kann der nichtlineare Kristall in einen Resonator eingebettet werden (OPO). Durch die Rückkopplung einer oder mehrerer der beteiligten Wellenlängen kann die Effizienz des Prozesses derart erhöht werden, dass bei der Konversion der Pumpstrahlung in Signal- und Idler-Strahlung genügend Ausgangsleistung erreicht wird. Ein Oszillator besteht, allgemein ausgedrückt, aus der Rückkopplung einer Verstärkung. Das Prinzip ist in Abbildung 1.10 dargestellt.

Man unterscheidet zwischen einfach resonanten OPOs, bei denen die Signal- *oder* die Idler-Wellenlänge zurückgekoppelt wird, oder doppelt resonante, bei denen *beide* zurückgekoppelt werden. Der zweite Typ bietet im Vergleich zum ersten den Vorteil einer niedrigeren Schwelle, also den Betrag der Pumpintensität, ab dem die Oszillation im Resonator beginnt, also die Resonatorverluste kleiner als die Verstärkung sind. Aufgrund der zwei zu erfüllenden Resonanzbedingungen ist er aber nicht alleine durch die Phasenanpassung durchzustimmen und er ist im Allgemeinen spektral instabiler [63]. Für eine Erniedrigung der Schwelle ist es außerdem möglich, die Pumpwellenlänge entweder nichtresonant zurückzukoppeln („double pass“) oder resonant zu überhöhen [58].

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein einfach resonanter OPO realisiert (s. Kapitel 3), da die Energie des zu Verfügung stehenden, gepulst betriebenen Pump lasers die Höhe der Schwelle deutlich übertrifft und die doppelt resonante Konfiguration ansonsten keine Vorteile bietet.

1.5.2 Wesentliche Parameter

Wesentliche Kenngrößen eines OPO sind seine Schwelle, die Effizienz sowie seine spektralen und räumlichen Eigenschaften [58].

Schwelle: Einige Eigenschaften, wie z.B. die spektrale Breite, hängen davon ab, bei welcher Schwellenüberhöhung der OPO betrieben wird. Abgesehen von den Kristalleigenschaften und der Wellenlänge erniedrigen folgende Resonatoreigenschaften die Schwelle:

- kurzer Resonator, da die Einschwingzeit kurz ist
- hohe Spiegelreflektivität
- kleine resonatorinterne Verluste (z.B. durch eine Anti-Reflex-Beschichtung der Kristalloberflächen)

Einschwingzeit: Sie wird dadurch bestimmt, nach wievielen Umläufen des Impulses die Schwellenleistung erreicht wird und die Frequenzkonversion effektiv stattfindet. Sie hängt von der Verstärkung, der Energiedichte der Pumpstrahlung, den resonatorinternen Verlusten und der Länge des Resonators ab. Von ihr hängt wiederum die Dauer des erzeugten Impulses ab sowie die Höhe der Energiekonversion, also die Effizienz des Vorgangs.

Spektrale Breite: Sie hängt indirekt von den spektralen Eigenschaften des Resonators ab und von der *Verstärkungsbandbreite* $\Delta\nu$ [58]:

$$|\Delta\nu| = \frac{0,886}{c \cdot \beta \cdot l} \quad \text{mit} \quad \beta = n_s - n_i + \lambda_s \frac{\partial n_s}{\partial \lambda_s} - \lambda_i \frac{\partial n_i}{\partial \lambda_i} \quad (1.48)$$

und mit der Länge des Kristalls l .

Je weiter die OPO-Moden in der Mitte der Verstärkungsbandbreite liegen, je größer also die Verstärkung ist, desto schneller wächst ihre Energie nach dem Beginn des Prozesses. Schließlich bauen sie die Pumpwelle auf Kosten der weiter am Rand liegenden Moden ab, bis nach einiger Zeit die ganze Energie in der zentralen Mode der Verstärkungsbandbreite vorliegt. Dieser Effekt der *dynamischen Kompression* führt allerdings bei den hier verwendeten Impulsen aufgrund ihrer kurzen Dauer noch zu keiner wesentlichen Verkleinerung der spektralen Breite. Ein näherungsweiser Ansatz zur Beschreibung der Änderung der spektralen Breite $\Delta\nu$ ist durch

$$\Delta\nu(p) = \frac{1}{\sqrt{p}} \Delta\nu \quad (1.49)$$

gegeben, wobei p die Anzahl der Durchläufe des Impulses durch das verstärkende Medium ist [80].

Die räumlichen Eigenschaften der OPO-Strahlung hängen vor allem von der Qualität der Pumpstrahlung und den Resonatoreigenschaften ab [81].

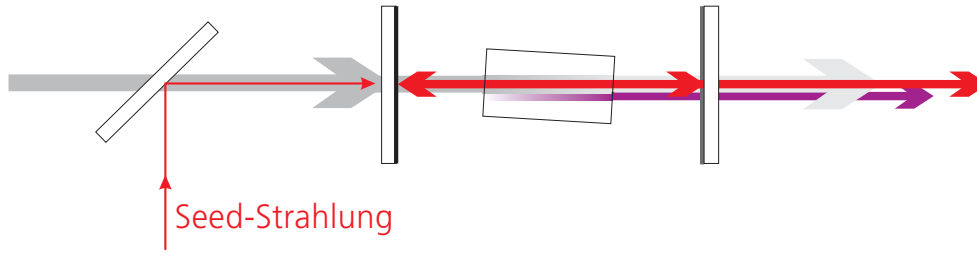


Abbildung 1.11: *Prinzip des Injection Seeding: Schmalbandige Seed-Strahlung geringer Leistung (hier mit der gleichen Wellenlänge wie die Signalstrahlung) wird zusätzlich zur Pumpstrahlung in den OPO eingekoppelt und bewirkt dadurch Schmalbandigkeit der Signal- und Idler-Strahlung*

1.5.3 Injection Seeding

Für eine präzise Messung von atmosphärischen Spurengasen muss sehr schmalbandige Laserstrahlung eingesetzt werden, deren Linienbreite deutlich unter der Breite der atmosphärischen Absorptionslinien liegt, wie Cahen et al. [82] betonen. Daher wird eine Methode benötigt, die die Schmalbandigkeit der OPO-Strahlung deutlich erhöht. Eine Möglichkeit ist die Integration frequenzselektiver Elemente in den Resonator, was aber die resonatorinternen Verluste erhöht und die Durchstimbarkeit erschwert [58]. Eine äußerst erfolgreiche Methode, die diese Nachteile nicht aufweist, ist das Injection Seeding [83].

Hierbei wird sehr schmalbandige Strahlung einer weiteren Strahlquelle in den OPO-Resonator eingekoppelt. Dabei entsteht keinerlei Eingriff in den Resonator (s. Abb. 1.11). Die Wellenlänge der Seed-Strahlung kann unabhängig von der Resonanz des OPO der Signal- oder der Idler-Wellenlänge entsprechen. Für einen Singlemode-Betrieb (Betrieb auf einer Resonatormode) des OPO können bereits geringe Seed-Leistungen von einigen μW genügen [83]. Die Durchstimbarkeit des OPO kann hierbei nur genutzt werden, wenn die Seed-Quelle entsprechend durchstimbar ist.

Wie bereits erwähnt, kann die Reduktion der Linienbreite eines OPO durch die dynamische Kompression bei kurzen Impulsen nicht ausreichend stattfinden. Liegt allerdings zu Beginn des Einschwingvorgangs in einer OPO-Mode bereits die Seedstrahlung vor, ist diese Mode anfangs bevorzugt, da sie nicht wie die anderen aus dem Rauschen startet [58]. Auch wenn es sich nicht um die Mode mit der größten Verstärkung handelt ($\Delta k \neq 0$), beginnt diese Mode, die Pumpwelle abzubauen. Das ist für die hier beschriebene Anwendung äußerst wichtig, da zwei nahe beieinander liegende Wellenlängen mit ein und derselben OPO-Konfiguration erzeugt werden sollen. Da die Mode mit $\Delta k = 0$ jedoch die effektivste Verstärkung besitzt, setzt sie sich nach einiger Zeit nach wie vor durch. Daher ist die Bevorzugung einer Mode durch das Seeding und der daraus folgende Singlemode-Zustand zeitlich begrenzt und nur bei gepulstem Betrieb nutzbar [83]. Bei geseedetem OPO ist die Schwelle gegenüber dem frei laufenden OPO herabgesetzt und die Konversionseffizienz ist erhöht.

Die Methode des Injection Seeding führt also zu den Vorteilen der Einmodigkeit bei gepulst betriebenen OPO bei gleichzeitiger Wahlmöglichkeit der Resonatormode inner-

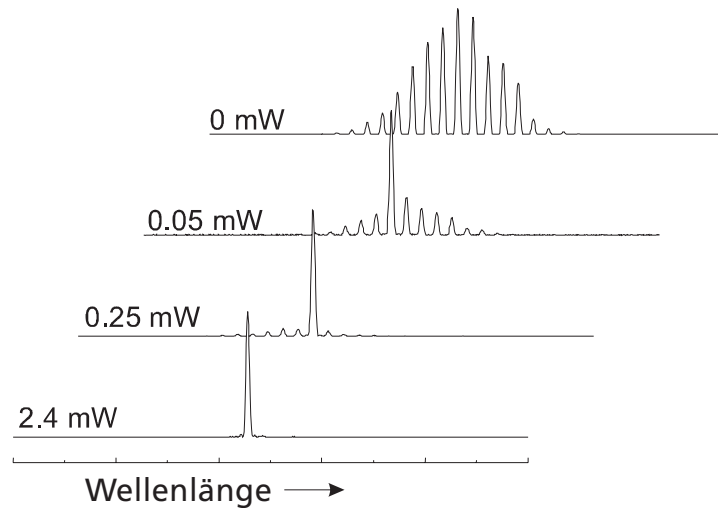


Abbildung 1.12: *Beispiel für eine OPO-Emission mit Injection Seeding – oben: kein Seeding, zu sehen sind die Resonatormoden des frei laufenden OPO; darunter: Selektion einer Mode durch die Seed-Strahlung bei größer werdender Seeder-Leistung [58]*

halb seiner Verstärkungsbandbreite, wobei die Mode für ein erfolgreiches Seeding einer Abschätzung nach [58, 59]

$$\frac{\sin(\Delta kl/2)}{(\Delta kl/2)} \leq 0,7 \quad (1.50)$$

erfüllen muss (mit l als Länge des Kristalls). Je weiter die geseedete Mode von der zentralen Mode der Verstärkungsbandbreite entfernt ist, desto höher ist die Anforderung an die Seedleistung für eine effektive Unterdrückung der anderen Moden. Die spektrale Breite des geseedeten OPO hängt von der Breite der Pumpstrahlung, von der Breite der Seedstrahlung, von den spektralen Eigenschaften des Resonators und von der Impulslänge ab [58]. Nach unten wird sie durch das Fourierlimit begrenzt. Für einen schmalbandigen Betrieb eines OPO sind sowohl ein schmalbandiger Seedlaser als auch ein schmalbandiger Pumplaser wichtige Voraussetzungen.

Kapitel 2

Numerische Simulation

Wesentliche Ziele dieses Kapitels sind, geeignete Messwellenlängen zu identifizieren, wichtige Systemparameter bezüglich ihrer Fehlerwirksamkeit zu optimieren und die zu erwartenden Messfehler zu quantifizieren. Dafür wurden verschiedene Aspekte des Messvorgangs numerisch simuliert und damit Sensitivitätsanalysen bezüglich verschiedener wirksamer Einflüsse durchgeführt.

Die auftretenden Messfehler werden folgendermaßen klassifiziert: Statistische Fehler, die sich durch Mittelung reduzieren lassen und systematische Fehler, die sich durch Abweichungen äußern, die konstant oder zeitlich variabel sind. Einige systematische Fehler sind von der Wahl der Absorptionslinie abhängig, andere unabhängig. Einige ergeben sich aus der Messmethode selbst, andere resultieren aus der technischen Umsetzung.

Einige der betrachteten Fehlerquellen fallen bei den später vorgestellten Validierungsmessungen nicht ins Gewicht, zum einen weil bestimmte Fehler technisch bedingt dominieren, zum anderen weil einige Probleme bei einem stationären Laborsystem und einer Messung in horizontaler Richtung nicht auftreten. Im Hinblick auf zukünftige weiterentwickelte Anwendungen, insbesondere flugzeuggetragene oder weltraumgestützte Messsysteme, werden jedoch viele der erfassbaren Fehlerquellen behandelt.

Vor dem Hintergrund, einen Gesamtfehler im Subprozent-Bereich zu erreichen [8], wurden die einzelnen möglichen Quellen von Messungenauigkeiten im Hinblick auf einen resultierenden Fehler von jeweils 0,1% untersucht.

In den folgenden Abschnitten wird zunächst auf die Methode eingegangen, im Anschluss daran auf die Anwendung und zuletzt werden die wesentlichen Ergebnisse zusammengefasst.

2.1 Beschreibung des Simulators

Die meisten Berechnungen wurden mit Hilfe von *IDL* („Interactive Data Language“, Research Systems, Inc.) durchgeführt, einer Software, die u.a. eine Programmierumgebung und Möglichkeiten zur Datenvisualisierung bietet. Die Simulationsroutinen basieren auf Algorithmen, die zur Simulation eines Wasserdampf-DIAL [84] entwickelt wurden. Sie wurden im Rahmen dieser Arbeit für die Simulation von IPDA-Messungen angepasst und um die Berechnung systematischer Fehler erweitert.

2.1.1 Prinzip

Ein schematischer Überblick über das Simulations-Prinzip ist in Abbildung 2.1 zu sehen. Links ist das Vorwärts-Modul abgebildet. Hier werden anhand verschiedener Parameter (Messwellenlängen, Linien-, Atmosphären- und Geräteparameter) die auf dem Detektor auftreffenden Leistungen P_{on} und P_{off} der von einem Target zurück gestreuten Laserimpulse berechnet. D.h. es werden synthetische Messsignale erzeugt. Anhand eines Detektor- und Vorverstärker-Modells wird daraus mittels einer analytischen Ableitung der statistische Fehler der CO₂-Teilchendichte gewonnen.

In einem Rückwärts-Modul (Retrieval-Modul) wird aus den künstlich erzeugten Leistungen P_{on} und P_{off} die Teilchendichte zurückgerechnet. Durch gezielte Variation der beteiligten Parameter lässt sich der resultierende systematische Fehler untersuchen. Hier wird angenommen, dass kein statistischer Fehler vorliegt.

Die Software wurde derart ausgelegt, dass sie für mehrere mögliche Konfigurationen verwendet werden kann: Entweder zur Simulation eines IPDA-Systems oder auch zur Simulation eines ortsauflösenden DIAL-Systems (im Wesentlichen anhand der Algorithmen aus [84], worauf hier nicht näher eingegangen werden soll). Des Weiteren lassen sich jeweils Messungen in horizontaler oder vertikaler Richtung simulieren.

Ein wesentlicher Bestandteil der Simulation ist die Berechnung des differentiellen Absorptionsquerschnittes $\Delta\sigma$ von CO₂ für gegebene Wellenlängen λ_{on} und λ_{off} . Das basiert auf der Berechnung eines Voigt-Profiles (siehe Abschnitt 1.2.2). Die Linienparameter stammen aus der HITRAN-Datenbank [44]. Es werden jeweils die Einflüsse aller benachbarten Linien im Intervall von ± 7 Wellenzahlen um die jeweilige Wellenlänge berücksichtigt. Weiter entfernte Linien wirken sich in der Regel nicht mehr aus. Die atmosphärischen Parameter, wie Temperatur-, Druckprofile [60] und Aerosol (gemäß ESA RMA, *reference model of the atmosphere* [8]), richten sich nach der speziellen Fragestellung. Bei vertikalen Messungen beispielsweise setzt sich der effektive Absorptionsquerschnitt für die gesamte Säule der Höhe nach aus vielen verschiedenen Voigt-Profilen zusammen, woraus dann, gewichtet mit der vertikalen Verteilung der Teilchenzahl, die effektive optische Dichte abgeleitet wird.

2.1.2 Berechnung des statistischen Fehlers

Dem statistischen Fehler (im Englischen mit „precision“ bezeichnet) liegen statistisch unabhängige Schwankungen im Signal aufeinander folgender Mess-Impulse zugrunde. Es wird als das „Rauschen“ auf dem Messsignal wahrgenommen. Durch Mittelung über n Impulse lässt sich der Fehler um den Faktor $1/\sqrt{n}$ vermindern [85]. Die Fehlerquellen sind in diesem Fall das Strom- und Spannungsrauschen des Detektors und des Vorverstärkers.

Entsprechend der Abbildung 2.1 werden im Vorwärtsmodul anhand von Gleichung 1.15 zunächst die auf dem Detektor auftreffenden Leistungen P_{on} und P_{off} berechnet. Zu beachten ist hierbei die korrekte Annahme der effektiven Impulslänge τ_{eff} des empfangenen Target-Reflexes. Der ausgesandte Laserimpuls mit der Dauer τ_{Laser} wird durch ein um die Strecke x aufgefächertes Target und die Bandbreite b des Detektor-Vorverstärkers zeitlich verbreitert. Nimmt man in erster Näherung an, dass der Laserimpuls gaußförmig

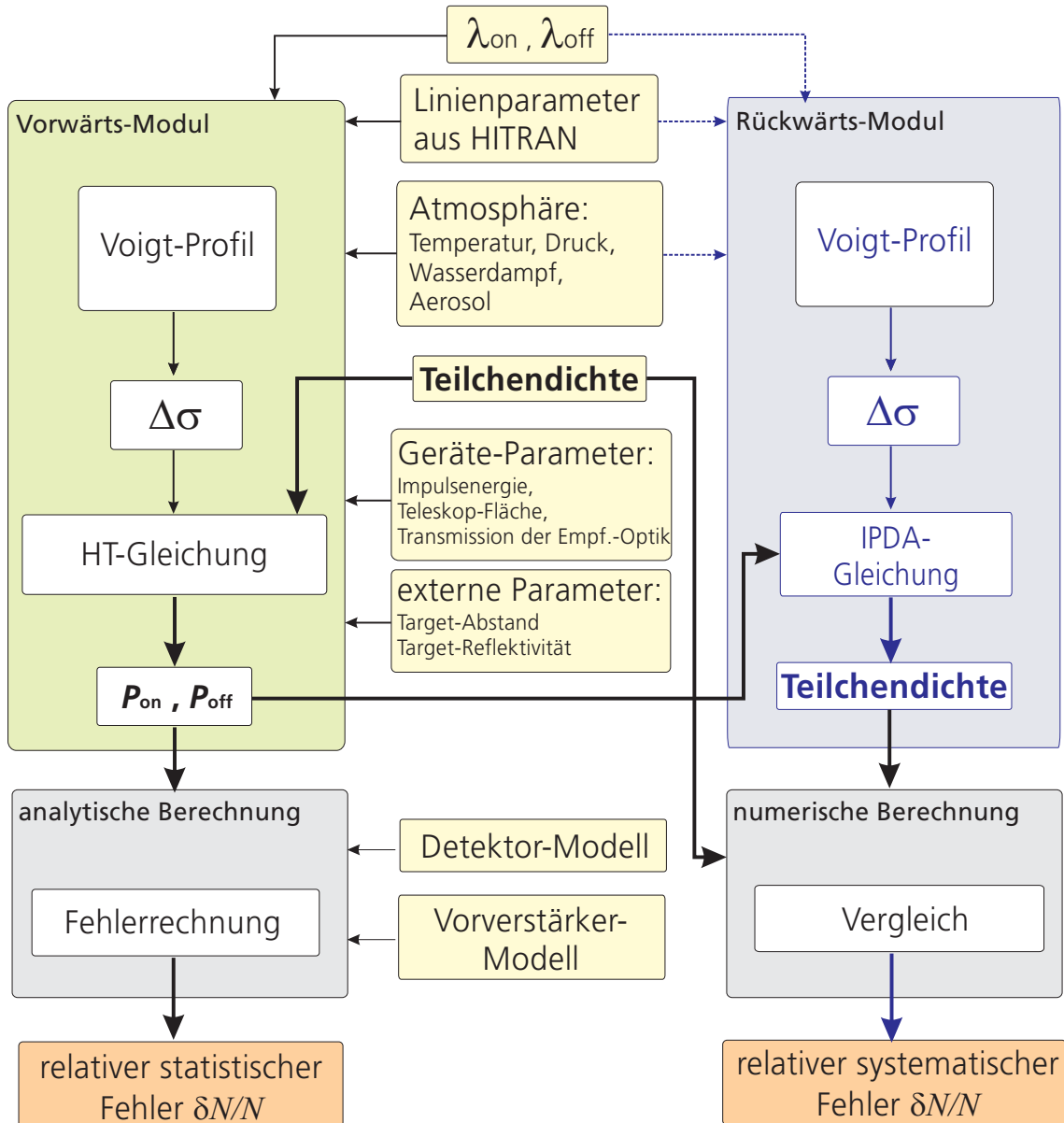


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung des Simulators – die HT-Gleichung („Hard Target“) basiert auf Gleichung 1.15, die IPDA-Gleichung auf Gleichung 2.3, die Fehlerrechnung auf Gleichung 2.4. Gestrichelte Linien zeigen die variierbaren Größen für die Berechnung der systematischen Fehler an.

ist, die Impuls-Verbreiterung durch das Target gaußförmig verläuft und die Antwort des Vorverstärkers ebenfalls gaußförmig ist, kann man die jeweiligen Halbwertsbreiten geometrisch addieren (da sich bei der Faltung von Gaußfunktionen die Halbwertsbreiten geometrisch addieren) [8]:

$$\tau_{eff} = \sqrt{\tau_{Laser}^2 + \left(\frac{1}{3 \cdot b}\right)^2 + \left(\frac{2 \cdot x}{c}\right)^2} \quad (2.1)$$

Ein Detektor- und Vorverstärker-Modell [8] berechnet das Stromrauschen (Photonenrauschen, shot noise) des Detektors sowie das Strom- und Spannungsrauschen des Vorverstärkers (Poisson-Statistik). Es wird eine *NEP* (noise equivalent power [86]) ausgegeben, also die dem Rauschniveau äquivalente Leistung, woraus mit den simulierten Messwerten P das Signal-Rauschverhältnis (*SNR*: signal to noise ratio) berechnet wird:

$$SNR = \frac{P}{NEP} \quad (2.2)$$

Um berechnen zu können, wie sich das *SNR* auf die zu bestimmende Teilchendichte auswirkt, benötigt man Gleichung 1.24:

$$N_{CO_2}^{Säule} = \frac{1}{2 \cdot \int_0^R w(r) \Delta\sigma(r) dr} \cdot \ln \frac{P_{off} \cdot P_{on}^{ref}}{P_{on} \cdot P_{off}^{ref}} \quad (2.3)$$

wobei P^{ref} die für jeden Laserimpuls nötigen Leistungs-Referenz-Messungen sind. Da jedes gepulste Lasersystem von Impuls zu Impuls Schwankungen in der Leistung aufweist [87], muss für jeden einzelnen Impuls eine Referenzmessung durchgeführt werden. Zudem sind die Ausgangsleistungen der Online- und Offline-Impulse nie exakt gleich. Die Quotientenbildung bewirkt bei einem optimal justierten Gerät eine Selbstkalibrierung. Die zusätzlichen Messungen erhöhen allerdings den statistischen Fehler.

Gemäß dem Gesetz der Gauß'schen Fehlerfortpflanzung ergibt sich aus Gleichung 2.3 der relative Fehler der Teilchendichte für eine CO_2 -Säule von 0 bis R :

$$\frac{\delta N_{CO_2}}{N_{CO_2}} = \frac{1}{N_{CO_2} \cdot 2 \cdot \int_0^R w(r) \cdot \Delta\sigma(r) \cdot dr} \cdot \sqrt{\frac{1}{SNR_{off}^2} + \frac{1}{SNR_{on}^2} + \frac{1}{SNR_{ref, off}^2} + \frac{1}{SNR_{ref, on}^2}} \cdot \frac{1}{\sqrt{n}} \quad (2.4)$$

Anhand der Berechnung des statistischen Fehlers wurden folgende wesentliche Parameter des Systems untersucht und optimiert:

- benötigte Impulsenergie
- Größe des Teleskops
- Anforderungen an den Detektor
- zulässiger Abstand zum Target
- nötige Signal-Mittelungsdauern
- benötigter differentieller Absorptionsquerschnitt

Zudem wird der Einfluss von atmosphärischem Aerosol berücksichtigt. Die wichtigsten Erkenntnisse sind in Abschnitt 2.4.2 zusammengefasst.

2.1.3 Berechnung der systematischen Fehler

Die systematischen Fehler werden mit Hilfe des Retrieval-Moduls des Simulators berechnet. Es erfolgt eine Rückrechnung der Teilchendichte aus den simulierten Messwerten P_{on} und P_{off} des Vorwärtsmoduls. Die zurückgerechnete Teilchendichte $N_{Störung}$ wird schließlich mit dem entsprechenden Wert N_{ref} verglichen, der im Vorwärts-Modul der Simulation angenommen wurde:

$$\frac{\delta N_{CO_2}}{N_{CO_2}} = \frac{N_{ref} - N_{Störung}}{N_{ref}} \quad (2.5)$$

Durch die Einführung gezielter Abweichungen (Störungen) bei den entsprechenden Parametern der Rückrechnung lassen sich die jeweiligen Auswirkungen untersuchen. Folgende Einflüsse auf die Messgenauigkeit wurden auf diese Weise betrachtet:

- zusätzliche Absorption durch Wasserdampf oder andere Gase
- Abweichungen der Druck- und Temperaturprofile
- Unsicherheiten der Linienparameter
- Auswirkungen von fehlerhaft angenommenen Verteilungen in der Säule
- Abweichungen der Mess-Wellenlängen

Weitere Ursachen systematischer Fehler wurden anhand der in den jeweiligen Abschnitten angegebenen Gleichungen unter Zuhilfenahme einzelner Module des Simulators untersucht:

- Nichtidealitäten der Laserstrahlung
- Reflektivitäts-Unterschiede für Online- und Offline-Wellenlängen
- Unsicherheiten bei der Power-Referenz-Messung
- Fehler bei der Entfernungsbestimmung

Auf der Grundlage der beschriebenen Berechnungsmethoden erfolgte die Bestimmung der optimalen Messwellenlängen, die in den folgenden Abschnitten behandelt wird.

2.2 Ermittlung geeigneter CO₂-Absorptionslinien

Im Folgenden wird die angewandte Methode zur Ermittlung von optimalen Messwellenlängen betrachtet. Die Auswahlkriterien orientieren sich hauptsächlich an einem minimierten, resultierenden Messfehler. Dafür wurde zunächst das Augenmerk auf diejenigen Fehlerquellen gelegt, die direkt abhängig von der gewählten Wellenlänge sind. Dazu zählen Messfehler, die sich ergeben aus der

- Größe des differentiellen Absorptionssquerschnitts
- Querempfindlichkeit mit anderen Gasen
- Temperaturabhängigkeit
- Druckabhängigkeit

Die folgenden Abschnitte zeigen die Vorgehensweise.

2.2.1 Optimaler Absorptionsquerschnitt

Für eine Vorauswahl der möglichen Wellenlängenbereiche wird zunächst der für den Messvorgang optimale differentielle Absorptionsquerschnitt $\Delta\sigma$ der Linie abgeschätzt. Der Kontrast, also die Differenz zwischen der Online- und der Offline-Absorption, sollte einerseits möglichst groß sein. Die Online-Absorption darf andererseits nicht zu groß sein, da das empfangene Signal sonst zu schwach, damit der Signal-Rausch-Abstand (*SNR*) zu klein und letztlich der Informationsgehalt des Messsignals wieder geringer ist. Die zu Grunde liegende Größe ist hierbei also das Rauschen des Detektor-Vorverstärker-Systems. Es gilt, einen Kompromiss zu finden.

Remsberg et al. [23] berechneten, dass die optimale optische Dicke (für einen Durchgang durch die Atmosphäre) in der Nähe von 1 liegt. Daraus ergibt sich für die Größenordnung des optimalen differentiellen Absorptionsquerschnittes

$$\Delta\sigma_{opt} = \frac{1}{N_{CO_2} \cdot R} \approx 1 \cdot 10^{-26} \text{ m}^2 \quad (2.6)$$

(für $R \approx 1$ bis 10 km, Teilchendichte N_{CO_2} für Atmosphäre unter Normalbedingungen und 370 $\mu\text{mol/mol}$ Mischungsverhältnis). Durchsucht man das Absorptionsspektrum von CO₂ diesbezüglich, findet man mehrere Banden, innerhalb derer einzelne Absorptionslinien diese Anforderung erfüllen. Abbildung 2.2 zeigt eine Übersicht im nahen Infrarot. Für Linien mit molekularen Linienstärken $S_0 > 10^{-23}$ cm ergeben sich unter atmosphärischen Bedingungen ausreichend große Absorptionsquerschnitte. Die Banden mit Wellenlängen $\lambda > 1,4 \mu\text{m}$ enthalten derartige Linien. Die Abstände der Linien voneinander sind dabei stets so groß, dass zwischen ihnen genügend kleine Absorptionen vorliegen, um den geforderten differentiellen Absorptionsquerschnitt zu erreichen (s. Abbildung 2.3, eine hochaufgelöste Darstellung des Bereichs bei 1570 nm).

Die in Tabelle 2.1 aufgelisteten Banden im nahen infraroten Spektralbereich enthalten bezüglich des Absorptionsquerschnittes geeignete Linien.

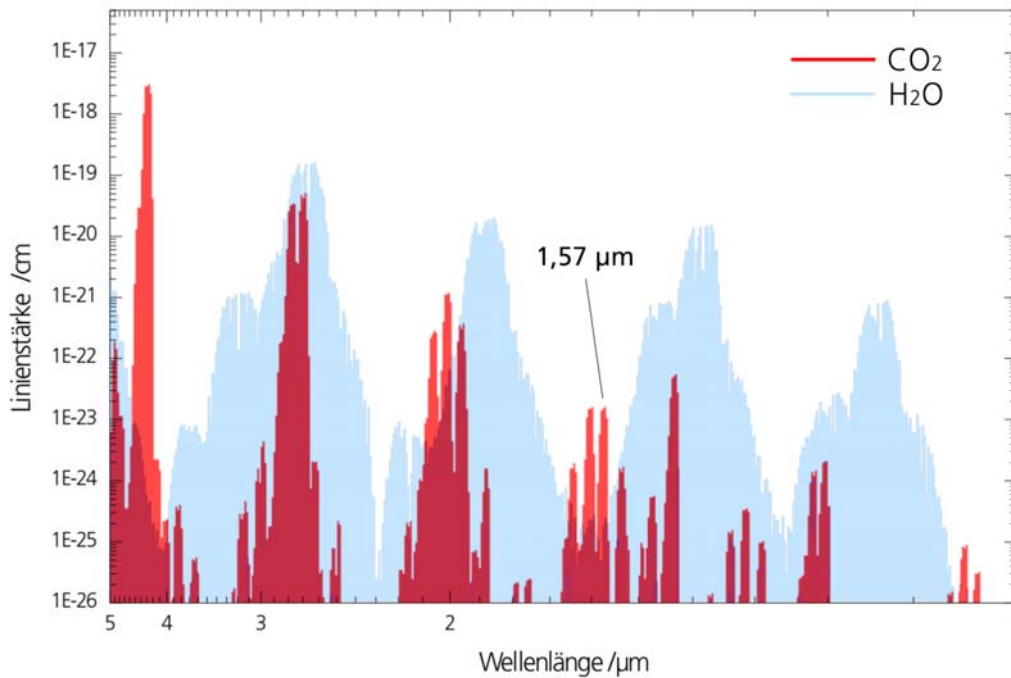


Abbildung 2.2: Linienstärken S_0 der Absorptionslinien von CO_2 und H_2O im nahen Infrarot gemäß HITRAN [44]

Bande	maximale $\Delta\sigma_{abs} / m^2$ (in Bodennähe)	prinzipielle Möglichkeiten für die Lage von Online
1,43 μm	$3 \cdot 10^{-26}$	Linienzentren oder Flanken
1,57 μm	$8 \cdot 10^{-27}$	nur im Linienzentrum
1,60 μm	$8 \cdot 10^{-27}$	nur im Linienzentrum
1,97 μm	$2 \cdot 10^{-25}$	Linienzentren oder Flanken
2,01 μm	$5 \cdot 10^{-25}$	Linienzentren oder Flanken
2,05 μm	$1 \cdot 10^{-25}$	Linienzentren oder Flanken

Tabelle 2.1: CO_2 -Absorptionsbanden im nahen Infrarot mit Linien, die für eine IPDA-Messung geeignete Absorptionsquerschnitte haben

Die Linien der Banden um 1,57 μm und 1,6 μm sind gerade noch stark genug, wenn die Online-Wellenlänge in das Linienzentrum gesetzt wird. Möchte man hingegen die Linienflanke verwenden, muss man auf die Linien innerhalb der anderen Banden zurückgreifen.

2.2.2 Querempfindlichkeit zu anderen Gasen

In der Regel absorbieren in der Atmosphäre bei einer bestimmten Wellenlänge immer mehrere Gase mehr oder weniger stark, sei es durch einen kleinen Abstand der Linien zueinander oder durch die Flanken starker, druckverbreiteter Linien. Um die Teilchenzahl eines bestimmten Gases präzise messen zu können, darf kein anderes Gas, dessen Absorptionseigenschaften und Konzentration nicht genau bekannt sind, zusätzlich in die-

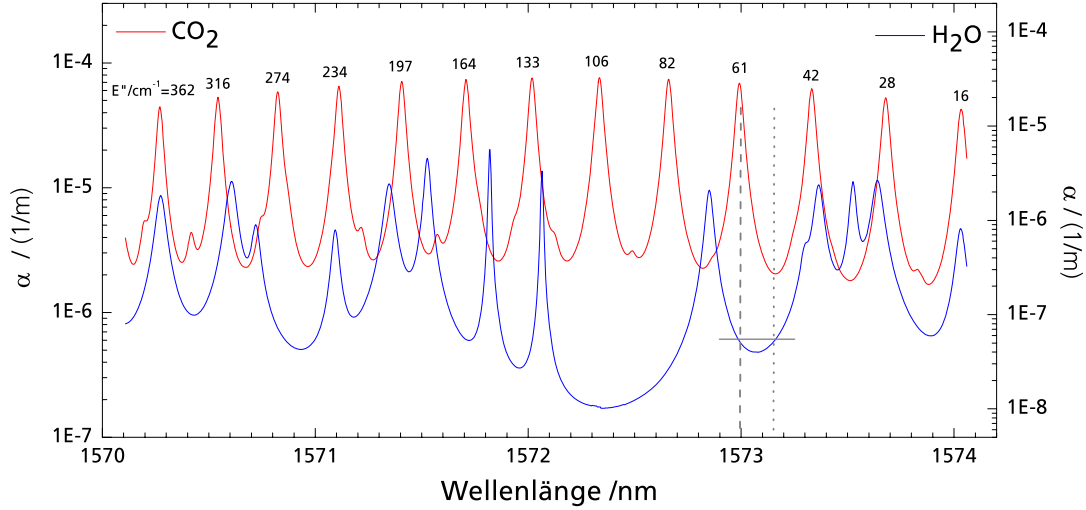


Abbildung 2.3: *Simulierte Extinktionskoeffizienten α von CO₂, R-Zweig der Schwingungsübergangs ($22^{01} \leftarrow 00^{00}$), und H₂O zwischen 1570 nm und 1574 nm für US-Standard-Atmosphäre in Bodennähe – zu sehen ist außerdem, dass die Absorption durch Wasserdampf bei den markierten Online- und Offline-Wellenlängen den gleichen Betrag hat (eine hochaufgelöste Darstellung weiterer Banden ist in Anhang B zusehen))*

sem Bereich zu stark absorbieren. Ambrico et al. [24] behandeln diese Problematik für DIAL-Messungen.

Allgemeines

Der Effekt einer zusätzlichen, unbekanntem Extinktion trägt zum einen zum statistischen Fehler bei und erzeugt zum anderen einen systematischen Fehler. Ist die Absorption zu stark, sinkt die gemessene Signalintensität, das *SNR* steigt und gleichzeitig der Messfehler. Ein systematischer Fehler entsteht, wenn die Absorption an den Positionen der Online- und Offline-Wellenlänge verschieden stark sind, weil sich dadurch der wirksame differentielle Absorptionsquerschnitt $\Delta\sigma$ um einen unbekanntem Betrag ändert. Allerdings dominiert der systematische Effekt deutlich. Bei den hier geforderten Fehlertoleranzen wirkt sich der Beitrag zum statistischen Fehler nicht mehr aus.

Der resultierende Fehler der CO₂-Teilchendichte, bedingt durch die zusätzliche Absorption eines anderen Gases, hat allgemein ausgedrückt folgende Abhängigkeit:

$$\frac{\delta N}{N} = \frac{\delta\tau}{\tau} = \frac{\tau_{Gas}}{\tau_{CO_2}} \quad (2.7)$$

mit der optischen Dicke τ_X des jeweiligen Gases.

Eingrenzung der möglichen CO₂-Linien

Gemäß der HITRAN-Datenbank liegen in einigen der im vorigen Abschnitt vorausgewählten Wellenlängen-Bereiche auch Kohlenmonoxid-, Methan-, Distickstoffoxid- und Sauerstoff-Linien. Für die in Frage kommenden CO₂-Linien ergibt sich diesbezüglich aber

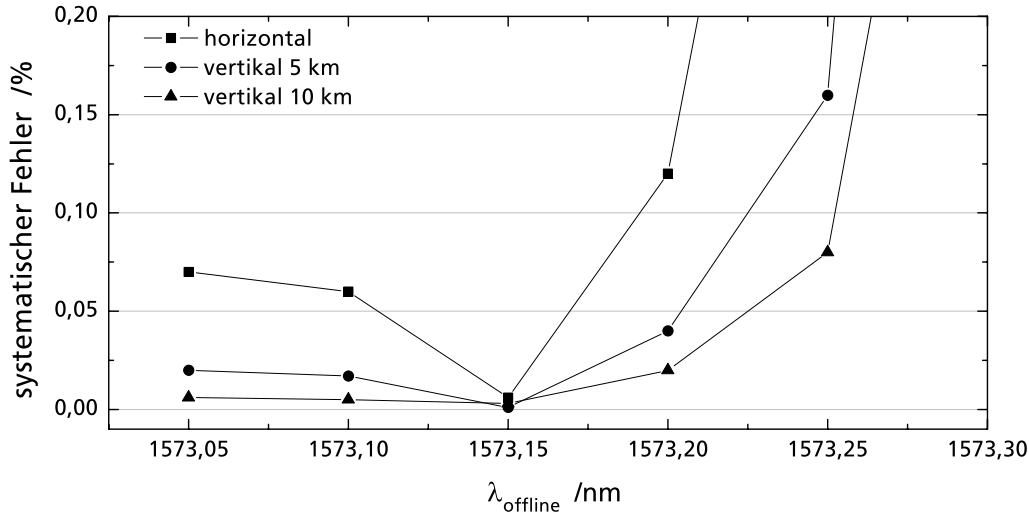


Abbildung 2.4: Beispiel für die Optimierung des systematischen Fehlers aufgrund von H_2O -Absorption durch Variation der Offline-Wellenlänge (Online bei 1572,99 nm)

keine Einschränkung, da die Linien der anderen Gase jeweils zu schwach absorbieren. Das Problem liegt jedoch in der starken **Wasserdampf-Absorption** (s. Abb. 2.2), die aufgrund der im Allgemeinen nicht ausreichend bekannten Wasserdampfkonzentration nicht korrigiert werden kann.

Für die oben vorausgewählten Bereiche wurde der Einfluss der Wasserdampflinien sehr genau betrachtet, denn es finden sich auch innerhalb starker Banden immer wieder genügend große Lücken. Der Wasserdampf-Hintergrund ist in den Bereichen bei 1,43 μm , 1,97 μm und 2,01 μm allerdings tatsächlich zu groß, womit diese Bereiche herausfallen.

Die kleinste Wasserdampf-Querempfindlichkeit wird erreicht, wenn die Online- und Offline-Wellenlängen entweder in Bereichen sehr geringer Wasserdampf-Absorption liegen (mit Extinktionskoeffizient $\alpha_{H_2O} \leq 0,001 \cdot \alpha_{CO_2}$ für $\delta N/N \leq 0,1\%$, vgl. Gl. 2.7) oder derart gewählt sind, dass die Wasserdampf-Absorption bei Online und Offline nahezu denselben Betrag hat (siehe z.B. Abbildung 2.3). Wie in Abschnitt 2.2.1 gezeigt, sind die Absorptionsquerschnitte der Linien in den Banden bei 1,57 μm und 1,6 μm nur geeignet, wenn als Online-Wellenlänge jeweils das Linienzentrum gewählt wird. Daher findet eine Abstimmung bezüglich einer für Online und Offline möglichst gleichen Wasserdampf-Absorption im Wesentlichen durch die Variation der Offline-Wellenlänge statt (siehe dazu Abbildung 2.4).

Zur Berechnung des resultierenden systematischen Fehlers wurde im Vorwärtsmodul der Simulation ein tropisches Wasserdampf-Profil [60] angenommen, das beim Retrieval ignoriert wurde. Das stellt die denkbar ungünstigste Situation dar. Auf diese Weise konnten einige Online-Offline-Paare ermittelt werden, die eine von atmosphärischem Wasserdampf nahezu unabhängige Messung ermöglichen.

Im Bereich um 2,05 μm können ebenfalls einige Messwellenlängen-Paare für eine wasserdampf-unempfindliche Messung gefunden werden. Im Vergleich zu den Banden bei 1,57 μm und 1,6 μm ergeben sich hier allerdings deutlich weniger Möglichkeiten. Siehe dazu auch die Spektren in Anhang B.

Zusammenfassend ist in Tabelle 2.2 die Möglichkeit zur Optimierung bezüglich der H₂O-Querempfindlichkeit für die verbliebenen Absorptionsbanden dargestellt.

Bande	Optimierung bzgl. H ₂ O-Interferenz
1,57 μm	gut
1,60 μm	gut
2,05 μm	eingeschränkt

Tabelle 2.2: Vergleich der Möglichkeiten, Absorptionslinien zu finden, für die eine geringe H₂O-Interferenz vorliegt

2.2.3 Untersuchung der Temperaturabhängigkeit

Wie bereits im Abschnitt 1.3.4 gezeigt, hängt der Absorptionsquerschnitt u.a. von der Temperatur ab. Entscheidend ist hierbei die Boltzmannbesetzung des Grundzustands des jeweiligen Übergangs. Der relevante Parameter ist dabei die Grundzustandsenergie E'' des Übergangs.

Zur Veranschaulichung (s. Abb. 2.5) wurden die Profile verschiedener Absorptionslinien mit unterschiedlichen E'' in Abhängigkeit von der Temperatur berechnet. Es ist zu erkennen, dass nicht nur im Bereich des Linienmaximums, sondern auch in den Bereichen zwischen den Linien verschiedene Temperaturabhängigkeiten auftreten. Dadurch hängt der genaue Wert des resultierenden Fehlers nicht nur von der Wahl der Linie, also dem E'' , und der Position der Online-Wellenlänge ab, sondern auch von der Position der Offline-Wellenlänge. Eine Minimierung der Temperaturempfindlichkeit muss dabei stets in Abstimmung mit der zuvor beschriebenen H₂O-Interferenz erfolgen.

Anhand der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Simulationsroutinen kann der Fehler, der sich aus der Ungenauigkeit des angenommenen Temperaturprofils ergibt, für beliebige Online-Offline-Wellenlängenpaare quantifiziert werden. Dabei wird in der Rückwärtsrechnung der Simulation ein Temperaturprofil verwendet [60], das gegenüber dem für die Vorwärtsrechnung verwendeten verändert ist. Daraus ergibt sich ein Fehler der berechneten Teilchendichte bzw. des Mischungsverhältnisses.

Bei vertikalen Messungen ändert sich die Linienform mit der Höhe der Messsäule. Dadurch ändert sich auch die Temperaturempfindlichkeit mit der Höhe. Die Auswirkung auf den resultierenden Fehler ist in der Regel vergleichsweise klein, sollte aber im Einzelfall untersucht werden. Zwei Beispiele sind in Abbildung 2.6 und 2.7 zu sehen. Die Abbildungen zeigen außerdem die resultierenden systematischen Fehler für die Messung der Teilchendichte und des Mischungsverhältnisses in Abhängigkeit von E'' , falls Online im Linienzentrum liegt. Es ist zudem eine leichte Abhängigkeit vom Temperatur-Niveau (US-Standard-Atmosphäre bzw. tropisches Temperaturprofil) zu erkennen. Analog können auch Linien gefunden werden, die eine temperaturunempfindliche Messung ermöglichen, wenn Online in die Linienflanke gesetzt wird. Tabelle 2.3 zeigt zusammenfassend die Intervalle optimaler Werte für E'' für eine Vorauswahl möglicher Linien.

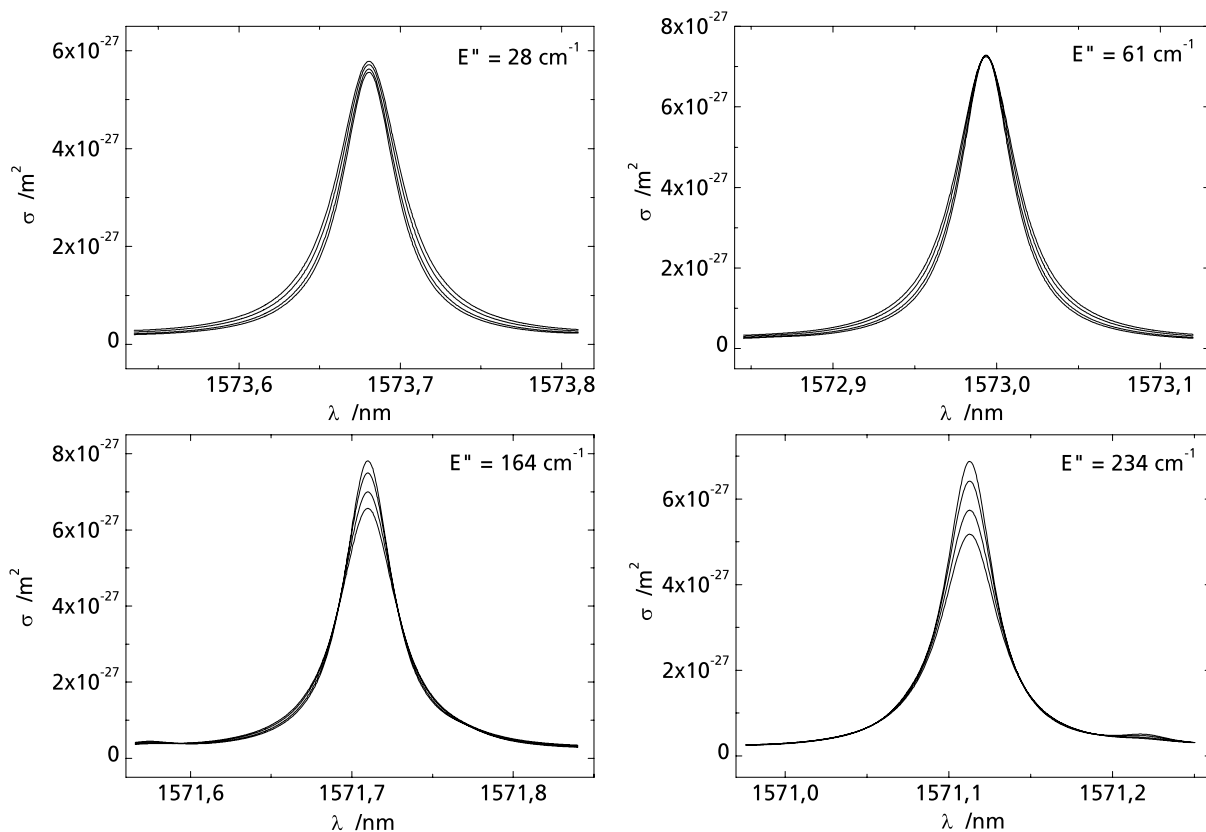


Abbildung 2.5: Temperaturabhängigkeit des Absorptionsquerschnitts σ verschiedener Absorptionslinien (Voigt-Profile über die Wellenlänge λ , gerechnet), zur Verdeutlichung des Effektes jeweils für: $T = 288 \text{ K}$, 268 K , 242 K und 221 K (bei 1013 hPa Luftdruck)

Optima für	E'' / cm^{-1} für Linienzentrum	E'' / cm^{-1} für Linienflanke
Messung Teilchendichte	30 - 100	150 - 400
Messung Mischungsverhältnis	170 - 250	350 - 500

Tabelle 2.3: Optimale Grundzustandsenergien E'' von Absorptionslinien für eine geringe Temperaturempfindlichkeit

Es besteht eine gute Übereinstimmung mit den theoretischen Ableitungen in Abschnitt 1.3.4. Die in Frage kommenden Absorptionsbanden bei $1,57 \mu\text{m}$, $1,60 \mu\text{m}$ und $2,05 \mu\text{m}$ enthalten jeweils Linien mit diesen E'' .

Die konkrete Auswahl möglicher Messwellenlängen ist ein Kompromiss zwischen der Wasserdampf-Querempfindlichkeit und der Temperaturempfindlichkeit, was durch eine Serie von Simulationen iterativ erfolgte. Als Ergebnis sind in Abschnitt 2.4.1 die optimierten Messwellenlängen und die korrespondierenden Messfehler zusammengestellt.

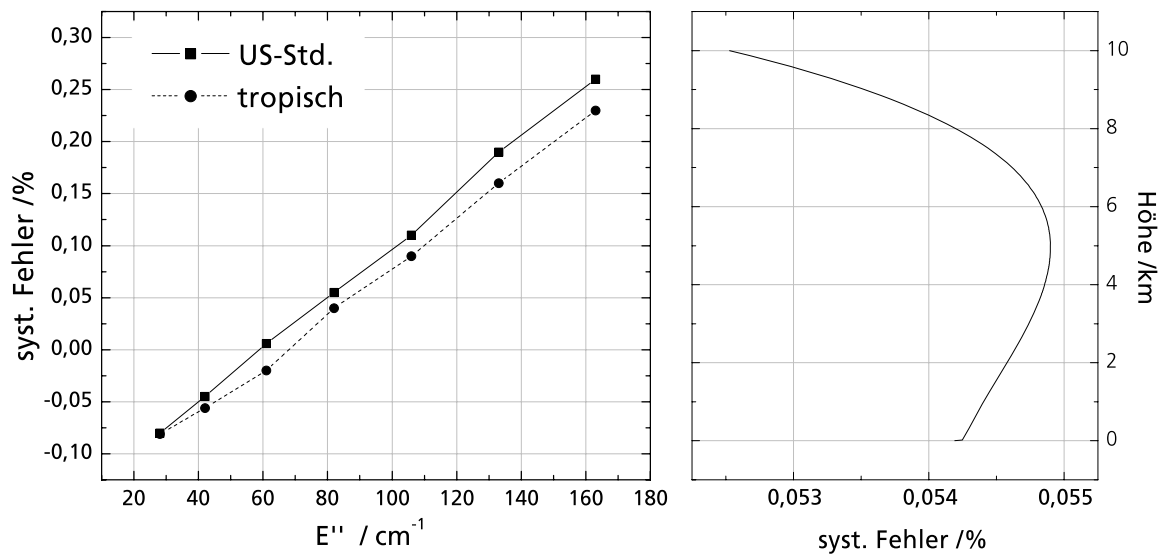


Abbildung 2.6: links: resultierender systematischer Fehler der **Teilchendichte** für Linien mit verschiedenen E'' (jeweils für 1K Temperaturunsicherheit) und Online im Linienzentrum; rechts: Beispiel für die Abhängigkeit der Temperaturempfindlichkeit von der Höhe der Säule (hier für Linie mit $E'' = 80 \text{ cm}^{-1}$)

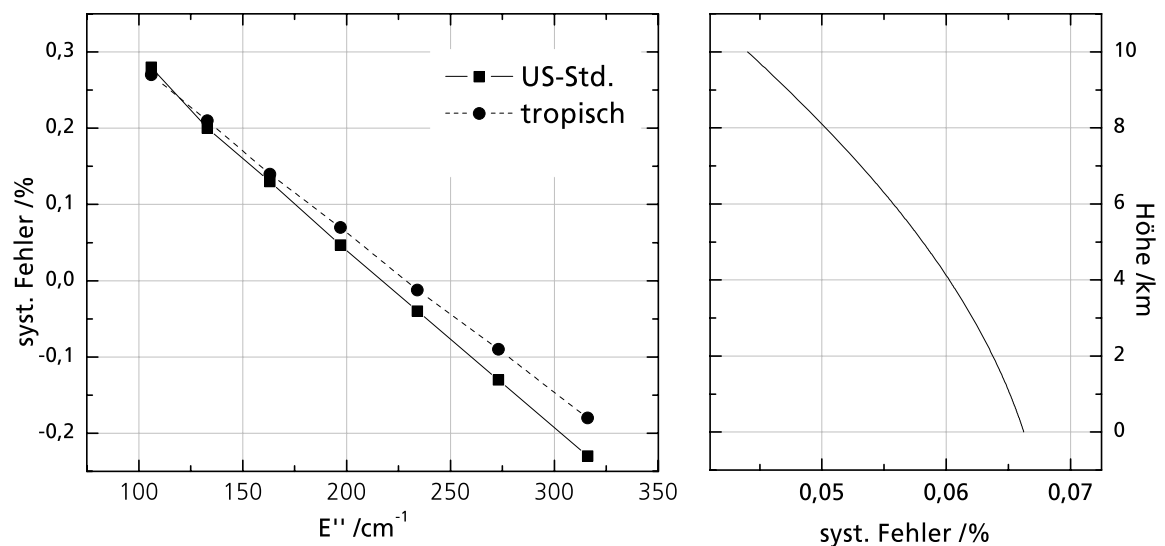


Abbildung 2.7: links: resultierender systematischer Fehler des **Mischungsverhältnisses** für Linien mit verschiedenen E'' (jeweils für 1K Temperaturunsicherheit) und Online im Linienzentrum; rechts: Beispiel für die Abhängigkeit der Temperaturempfindlichkeit von der Höhe der Säule (hier für Linie mit $E'' = 197 \text{ cm}^{-1}$)

2.2.4 Untersuchung der Druckabhängigkeit

In Abschnitt 1.2.2 wurde gezeigt, dass sich der Luftdruck durch die Druckverbreiterung einer Absorptionslinie auf den Absorptionsquerschnitt auswirkt. Hierbei spielt im Wesentlichen der Bodendruck eine Rolle, da das Höhenprofil des Luftdrucks in der Regel der barometrischen Höhenformel folgt [60, 88]. Die Parameter für die Druckverbreiterung γ_{air} und γ_{self} variieren bei den verschiedenen CO₂-Linien nur schwach. Zur Berechnung der Sensitivität gegenüber einem fehlerhaft angenommenen Bodendruck wird, wie zuvor bei der Temperaturempfindlichkeit, in der Rückrechnung der Simulation ein gegenüber dem der Hinrechnung verändertes Druckprofil verwendet.

Da sich der Luftdruck gemäß der idealen Gasgleichung auf die Teilchenzahl pro Volumen auswirkt, ergeben sich analog zur Temperaturempfindlichkeit Unterschiede in den Sensitivitäten bei der Berechnung der Teilchendichte bzw. des Mischungsverhältnisses. Die Ergebnisse der Simulationen sind in Abschnitt 2.4.1 dargestellt.

2.3 Weitere Ursachen für Messungenauigkeiten

Eine Reihe von Ursachen für Messungenauigkeiten ist von der Wahl der Absorptionslinie unabhängig. Sie werden in den folgenden Abschnitten diskutiert.

2.3.1 Ungenauigkeiten resultierend aus der Messmethode

Ausser den bereits behandelten Aspekten, gibt es weitere Ursachen für Messungenauigkeiten, die auf der Messmethode beruhen und nicht durch technische Maßnahmen beeinflussbar sind.

Ungenauigkeit der Linienparameter

Für die Berechnung der CO₂-Teilchendichte aus den Messdaten kommt es darauf an, den differentiellen Absorptionsquerschnitt $\Delta\sigma$ mit hoher Genauigkeit zu kennen. Die Teilchendichte ist nach Gleichung 1.24 umgekehrt proportional zu $\Delta\sigma$. Ein relativer Fehler $\delta\Delta\sigma/\Delta\sigma$ hat somit den betragsmäßig gleichen relativen Fehler der gemessenen Teilchendichte zur Folge:

$$\frac{\delta N}{N} = \frac{\delta\Delta\sigma}{\Delta\sigma} \quad (2.8)$$

Bei der Auswertung der Messdaten fließen zur Berechnung des Absorptionsquerschnittes die für jede Linie spezifischen Linienparameter ein. Sie werden durch spektroskopische Messungen in Kombination mit mathematischen Methoden bestimmt [47, 48, 89] und sind ihrerseits fehlerbehaftet. Durch verbesserte Mess- und Berechnungsmethoden werden die Genauigkeiten jedoch stetig erhöht. Im Rahmen dieser Arbeit wurden stets Daten aus HITRAN96 [44] verwendet – lediglich der Druckshift wurde [48] entnommen. In Tabelle 2.4 sind die angegebenen, maximalen Fehler aufgelistet.

Die Ungenauigkeit der Wellenlänge des Linienzentrums von 0,25 pm spielt bei der hier verwendeten Messmethode keine Rolle, da die Wellenlänge der Laserimpulse stets auf eine CO₂-Referenzlinie mittels einer Multipasszelle stabilisiert wird (s Abschn. 3.2.3).

	Fehler gemäß [44]	Fehler gemäß [48]	CO ₂ -Messfehler	
Linienstärke	5 %	4,2 %	5,5%	4,9 %
Druckverbreiterung	10 %	2,2 %	11 %	2,5 %
Wellenlänge	0,25 pm	–	–	
Druckshift	–	0.05 MHz/mbar	0,2 %	

Tabelle 2.4: *Angegebene Fehler der Linienparameter und daraus resultierende CO₂-Messfehler*

Die genannten Fehler, die durch keine apparativen Maßnahmen zu beheben sind, führen allerdings im Wesentlichen zu einem konstanten Bias, um den der Absolutwert des gemessenen CO₂-Gehaltes verschoben ist. Für Messungen des absoluten CO₂-Gehaltes mit einer Genauigkeit im Sub-Prozentbereich eignen sich die HITRAN-Parameter nicht. Dafür müssen die Linienparameter der verwendeten Linie gezielt mit möglichst hoher Genauigkeit bestimmt werden. Des Weiteren besteht die Möglichkeit einer Kalibrierung mit einem anderen Messgerät, um diesen Bias zu minimieren. Auf die relativen CO₂-Änderungen während einer Messung haben diese Ungenauigkeiten keine Auswirkung.

Fehler bei der Auswertung des CO₂-Säulengehaltes durch bodennahe Gradienten

Wie in Abschnitt 1.3 gezeigt, setzt die Messung des Säulengehaltes die Kenntnis der Teilchenverteilung innerhalb der Säule voraus. Im Folgenden soll gezeigt werden, zu welchen Fehlern es kommen kann, wenn die wahre Verteilungsfunktion unbekannt ist.

Es sei als Beispiel angenommen, dass die Messung von einem Flugzeug in 10 km Höhe aus zum Boden erfolgt. In Bodennähe befindet sich eine etwa 100 m dicke Inversionschicht, in der sich Kohlendioxid mit 480 $\mu\text{mol/mol}$ angesammelt hat (wie es z.B. bei den Vergleichsmessungen der Fall war, s. Kapitel 4), darüber beträgt das Mischungsverhältnis 380 $\mu\text{mol/mol}$.

Wertet man nun eine derartige Messung nach Gleichung 1.24 aus, wobei die Teilchendichte der gesamten Säule unbekannt ist und das Mischungsverhältnis über die Höhe als konstant angenommen wird (die Verteilungsfunktion der CO₂-Moleküle also der der Luftteilchen folgt) ergibt sich ein Fehler von 0,22 % gegenüber dem tatsächlichen Wert. Wertet man hingegen mit Gleichung 1.26 aus, wobei man annimmt, dass die Teilchendichte nur bis 200 m Höhe unbekannt ist (die Verteilungsfunktion entspricht weiterhin der der Luftteilchen), sie darüber aber bekannterweise bei 380 $\mu\text{mol/mol}$ liegt, ergibt sich für die Teilchendichte der kompletten Säule ein Fehler von nur 0,02 % gegenüber dem tatsächlichen Wert. Legt man die Schwelle zwischen bekanntem und unbekanntem Teil der Säule vorsichtiger als zuvor auf 500 m, ist der Fehler immer noch bei nur 0,03 %.

Durch die zusätzliche, realistische Annahme, dass das Mischungsverhältnis ab einer bestimmten Höhe auf einem bekannten und konstanten Niveau liegt [54], kann also der Fehler, der bei Auswertung zwangsläufig gemacht wird, wenn die Verteilungsfunktion bei bodennahen Gradienten fehlerhaft angenommen wird, klein gehalten werden.

Einfluss von atmosphärischer Streuung

Die zur Messung verwendeten Laserimpulse erfahren beim Durchgang durch die Atmosphäre neben der Absorption durch das zu messende CO_2 eine Extinktion aufgrund von Rayleigh-Streuung (Streuung an Luftmolekülen) und Mie-Streuung (Streuung an Aerosolen) [90]. Durch die Messung der *differentiellen Absorption* entsteht ein systematischer Messfehler nur dann, wenn die Extinktion wellenlängenabhängig ist.

Die Intensität der Rayleigh-Streuung ist proportional zu $(1/\lambda^4)$, also stark wellenlängenabhängig. Bei den hier verwendeten Wellenlängen bei $1,57 \mu\text{m}$ ist sie allerdings bereits so schwach, dass sich auch ihre Wellenlängenabhängigkeit nur gering auswirkt. Die Mie-Streuung ist in diesem Wellenlängenbereich stärker ausgeprägt, die Simulationen ergeben jedoch, dass auch ihre Wellenlängenabhängigkeit auf die beschriebenen Messungen keine relevante Auswirkung hat.

Zusammengefasst resultiert aus den Wellenlängenabhängigkeiten von Rayleigh- und Mie-Streuung ein systematischer Messfehler von $< 0,05 \%$ für die betrachteten IPDA-Messungen (Aerosolaten aus ESA RMA [8]).

2.3.2 Erforderliche Eigenschaften des Messsystems

Die bisher behandelten systematischen Fehler haben ihre Ursache in der Messmethode. Sie können durch die Art des Messaufbaus nicht beeinflusst werden. Die Probleme, die sich aus den Eigenschaften realer Systemkomponenten ergeben, werden im Folgenden analysiert.

Spektrale Anforderungen an die erzeugte Laserstrahlung

Für eine Messung mit hoher Präzision müssen an die Laserlichtquelle höchste Anforderungen gestellt werden. Die in den vorigen Abschnitten betrachteten Aspekte gingen immer von einer idealen Lichtquelle mit einer unendlich schmalen spektralen Breite und einer absolut festen Wellenlänge aus. Das kommt in der Realität jedoch nicht vor. Daher soll im Folgenden die Sensitivität gegenüber den nicht-idealen Eigenschaften realer Laserlichtquellen untersucht werden. Bei Ismail et al. [45] ist eine Behandlung dieses Aspekts bezüglich Lidarmessungen von atmosphärischem Wasserdampf zu finden.

Zusammenfassend betrachtet führt eine mangelhafte Präzision der emittierten Laserstrahlung zu einem Messfehler, da in der Messung eine andere Absorption wirkt als in der Auswertung angenommen wird. Folgende mögliche Ungenauigkeiten der Laserstrahlung des hier verwendeten OPO-Systems wurden untersucht: Eine Abweichung der mittleren emittierten Wellenlänge von der gewollten („*Offset*“), eine statistische Schwankung der Wellenlänge der einzelnen Laserpulse um diesen Mittelwert („*Jitter*“), eine spektrale Verteilung („*spektrale Breite*“) aufgrund von *OPO-Seitenmoden*.

In der Literatur wird an dieser Stelle häufig ein *effektiver differentieller Absorptionsquerschnitt* eingeführt, der eine spektrale Verteilung des Lasers berücksichtigt, wie es z.B. von Ambrico et al. [24] beschrieben wird. Aus Kompatibilitätsgründen bezüglich der Simulationsroutinen wurde hier ein etwas anderer Ansatz verfolgt, der auf der Berechnung einer effektiven Transmission beruht.

Wenn man davon ausgeht, dass die Online ausgesandte Leistung eine spektrale Verteilung hat, also $P_0 = P_0(\lambda)$, ergibt sich für die empfangene Leistung P_{on} in Anlehnung an Gleichung 1.15 verallgemeinert

$$P_{on} = C \cdot \int P_0(\lambda) \cdot e^{-2\tau(\lambda)} d\lambda \quad (2.9)$$

wobei in C alle übrigen Parameter zusammengefasst sind. Mit der normierten, relativen spektralen Verteilung der ausgesandten Laserstrahlung $a(\lambda)$, mit $\int a(\lambda) d\lambda = 1$ ergibt sich

$$P_0(\lambda) = a(\lambda) \cdot P_0 \quad (2.10)$$

Daraus folgt

$$P_{on} = C \cdot P_0 \int a(\lambda) \cdot e^{-\tau(\lambda)} d\lambda \quad (2.11)$$

Berechnet man die Teilchendichte mit Gleichung 1.24 bei Vorliegen einer spektralen Verteilung der Laserstrahlung, ergibt sich ein Fehler, da der differentielle Absorptionsquerschnitt $\Delta\sigma$ die spektrale Verteilung unberücksichtigt lässt. Der Fehler der Teilchendichte lässt sich aus der Fehleinschätzung der auftretenden Transmission ableiten. Aus der effektiven Transmission

$$T_{eff} = \int a(\lambda) \cdot e^{-2\tau(\lambda)} d\lambda \quad (2.12)$$

und der Transmission bei idealem, unendlich schmalen Laserspektrum

$$T_0 = e^{-2\tau_0} \quad (2.13)$$

ergibt sich der relative systematische Fehler der Teilchendichte:

$$\frac{\delta N}{N} = \frac{1}{2 \Delta\tau} \cdot \ln \left(\frac{T_{eff}}{T_0} \right) \quad (2.14)$$

Auf diese Weise wurden die Auswirkungen eines Wellenlängen-Jitters sowie von OPO-Seitenmoden abgeschätzt.

Wellenlängen-Offset: Da der differentielle Absorptionsquerschnitt von Online und Offline abhängt, haben Abweichungen beider Wellenlängen einen systematischen Fehler zur Folge. In Abbildung 2.8 sind die resultierenden Fehler dargestellt. Liegt Online in der Linienflanke, wirken sich Abweichungen durch den stärkeren Gradienten des Absorptionsquerschnittes mehr aus als in der Linienmitte. Die Anforderungen an die Offline-Genauigkeit sind wesentlich geringer, da sich Wellenlängen-Abweichungen auf den differentiellen Absorptionsquerschnitt durch die kleineren Werte und Gradienten des Absorptionsquerschnittes vergleichsweise schwach auswirken. Bei der Berechnung wurde als Laserprofil eine Delta-Funktion, also eine unendlich schmale spektrale Breite der Laserstrahlung, angenommen. Man erkennt, dass für Messungen in horizontaler Richtung in Bodennähe eine Abweichung von 70 MHz zu einem Fehler von 0,1 % führt, falls Online in der Linienmitte ist. Die Abweichung der Offline-Wellenlänge sollte bei maximal 2 GHz liegen.

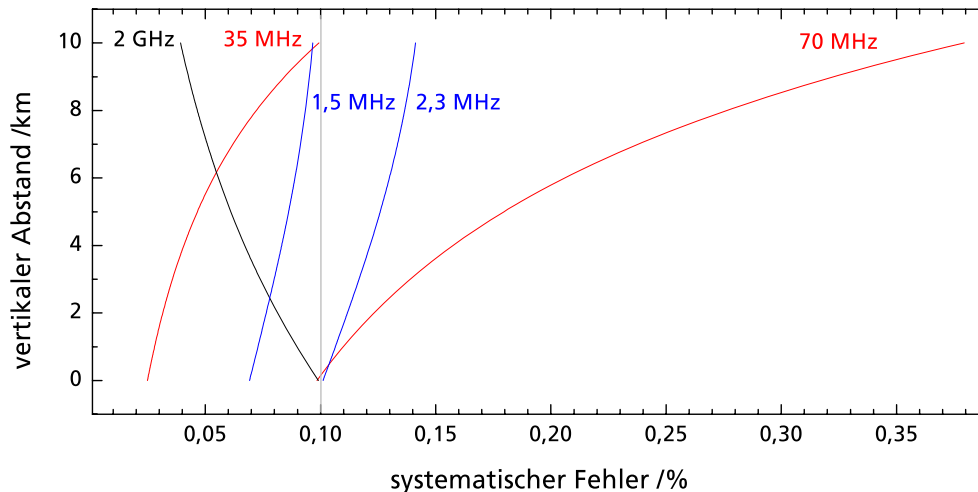


Abbildung 2.8: *Systematischer Fehler aufgrund eines Wellenlängen-Offset; rot: Online in der Linienmitte, blau: Online in der Flanke, schwarz: Offline*

Ein Wellenlängen-Jitter: Bei der Mittelung über eine große Anzahl von Impulsen, deren Wellenlänge statistisch verteilt ist (wie bei einer realen Messung), erhält man effektiv eine gaußförmige spektrale Verbreiterung der emittierten Laserstrahlung. Für die Berechnung des resultierenden Fehler wurde als Laserprofil $a(\lambda)$ daher eine Gauß-Funktion angenommen. In Abbildung 2.9 sind die resultierenden Fehler für Messungen in vertikaler Richtung für verschiedene Messgerät-Target-Abstände dargestellt. Da der Fehler nicht von der Länge der Absorptionsstrecke abhängt, sondern nur von der Form der Absorptionslinie (die sich mit der Höhe ändert), gelten für horizontale Messungen die Werte eines vertikalen Abstandes von 0 km. Um einen Fehler von unter 0,1% bei einer horizontalen Messung zu erreichen, ist also ein Jitter von unter 100 MHz nötig.

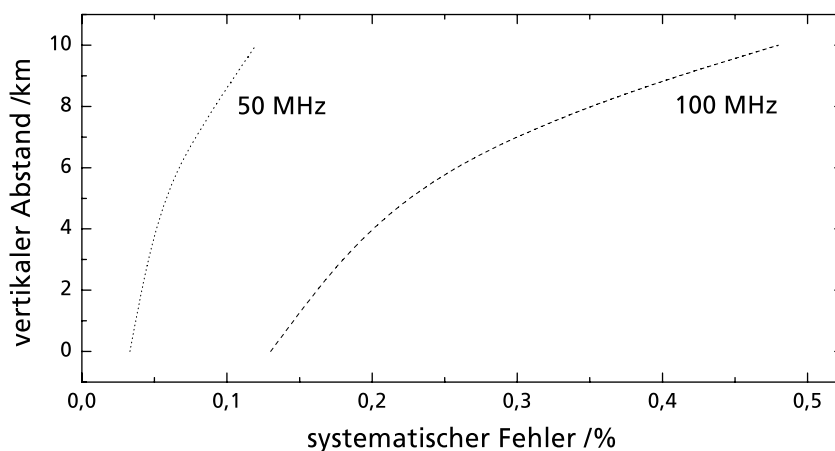


Abbildung 2.9: *Systematischer Fehler in Abhängigkeit vom vertikalen Messgerät-Target-Abstand bei einem Wellenlängen-Jitter mit einer Standardabweichung von 50 MHz bzw. 100 MHz (1σ)*

Die spektrale Reinheit einer Laserstrahlung ist ein Qualitätskriterium und kann zur Kontrolle der *spektralen Breite* herangezogen werden. Die spektrale Reinheit ist folgendermaßen definiert [91]: Sie entspricht dem Anteil der in einem festgelegten Wellenlängen-Intervall emittierten Energie von der gesamten emittierten Energie. Im Falle des hier verwendeten OPOs steht eine hohe spektrale Reinheit für die erfolgreiche Unterdrückung der unerwünschten OPO-Seitenmoden durch das *Injection-Seeding*.

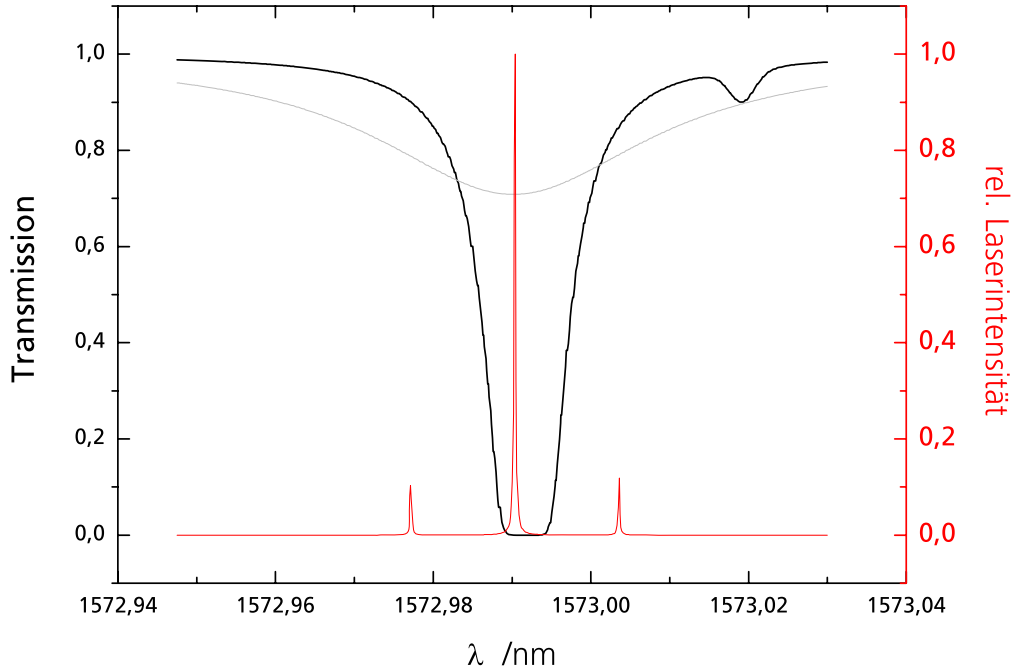


Abbildung 2.10: Illustration des Messprinzips der spektralen Reinheit – simulierte Profile für: Laserspektrum mit Seitenmoden (rot), Filterfunktion durch Multipasszelle (schwarz), atmosphärische CO_2 -Linie (grau)

Das genannte Wellenlängen-Intervall wird im Messaufbau durch eine Filterfunktion $f(\lambda)$ bestimmt. Stand der Technik ist es, dafür eine Multipass-Absorptionszelle zu verwenden (s. Abschn. 3.2.6).

Die spektrale Reinheit p ergibt sich aus

$$p = 1 - \left(\frac{P}{P_0} \right) = 1 - \int a(\lambda) f(\lambda) \cdot d\lambda \quad \text{mit} \quad f(\lambda) = \exp(-\sigma_{\text{CO}_2}(\lambda) \cdot N_{\text{CO}_2} \cdot l) \quad (2.15)$$

wobei P_0 die Leistung vor und P nach der Absorptionszelle ist und l die Länge des optischen Weges in der Absorptionszelle.

In Abbildung 2.10 ist die Transmissionskurve, also $f(\lambda)$, dargestellt, die sich aus der Konfiguration des im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Aufbaus ergibt. Das Zentrum dieser Linie ist gegenüber der atmosphärischen druckverschoben. Die Befüllung der Multipasszelle ist daher so gewählt (35 hPa Druck), dass die zentrale Mode der Laserstrahlung innerhalb des gesättigten, optisch dichten Bereiches der Transmissionskurve liegt.

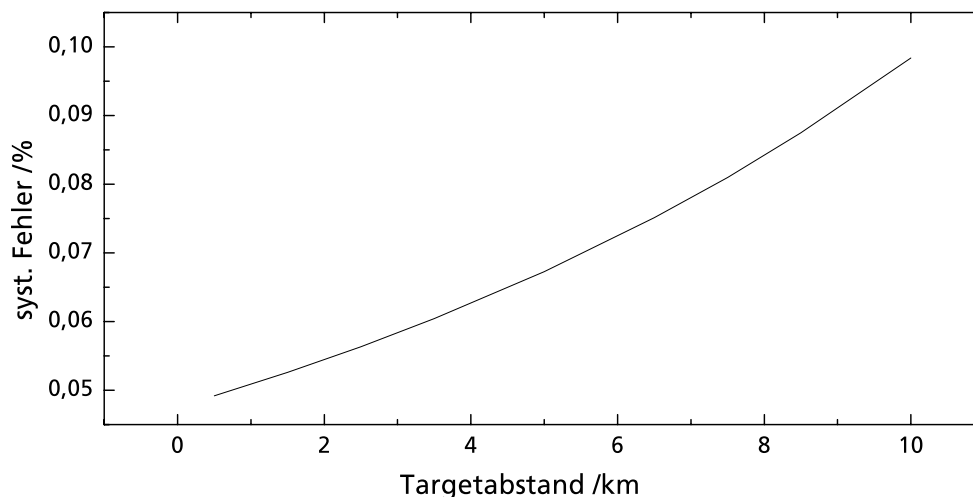


Abbildung 2.11: *Abhängigkeit des systematischen Fehlers aufgrund spektraler Unreinheit von der Länge der Absorptionsstrecke – hier: spektrale Reinheit 99,9 % durch Seitenmoden mit 100 pm Abstand zur zentralen Mode*

Wenn der OPO nicht optimal im singlemode-Betrieb läuft, also **Seitenmoden** auftreten (s.a. Abschn. 1.5.3), liegt eine vergrößerte spektrale Breite bzw. eine kleine spektrale Reinheit der Laserstrahlung vor.

Zur Illustration sind in Abbildung 2.10 neben der zentralen Mode auch die ersten beiden Seitenmoden zu sehen, die in der Darstellung eine Amplitude von jeweils ca. 10% der Hauptmode haben. Der Abstand zur zentralen Mode entspricht hier dem Modenabstand, der sich für die OPO-Cavity des unten beschriebenen Aufbaus ergibt (siehe Abschnitt 3.2.2). Man erkennt, dass durch die Schmalheit der verwendeten Filterkurve die auftretenden Seitenmoden detektiert werden können, da sie nicht herausgefiltert werden. Durch den Teil der Gesamtleistung des Laserimpulses, der nicht in der zentralen Mode vorliegt, wird bei der Messung weniger Leistung durch das atmosphärische CO_2 absorbiert als angenommen.

Der resultierende Messfehler hängt neben dem Abstand der Seitenmoden zur zentralen Mode vor allem vom Amplitudenverhältnis der zentralen Mode zu den Seitenmoden ab. Dieses Verhältnis wird maßgeblich von der optischen Dicke beeinflusst, ist also auch abhängig der Länge der Absorptionsstrecke. Durch die zunehmende Absorption der zentralen Mode bei längerer Strecke gewinnen die Seitenmoden an Gewicht. Ein Beispiel für den resultierenden systematischen Fehler für 100 pm (12 GHz) Seitenmodenabstand ist in Abbildung 2.11 zu sehen: Bei 99,9 % spektraler Reinheit wächst der systematische Fehler bis auf 0,1 % bei einer Distanz von 10 km. Die Berechnung erfolgte gemäß Gleichung 2.14.

In einer Serie von Simulationsrechnungen wurde des Weiteren die Abhängigkeit des resultierenden Fehlers von der spektralen Reinheit untersucht (siehe Abbildung 2.12). Das Laserprofil $a(\lambda)$ wurde dabei durch eine unendlich schmale zentrale Mode und zwei unendlich schmale Seitenmoden, variabel in Abstand und Amplitude, repräsentiert. Das erlaubt die Simulation verschiedener OPO-Resonatorlängen mit unterschiedlich guter Seitenmodenunterdrückung durch das Injection Seeding. Die Geraden zeigen den Zusammenhang zwischen der spektralen Reinheit und dem resultierenden systematischen Fehler für einen

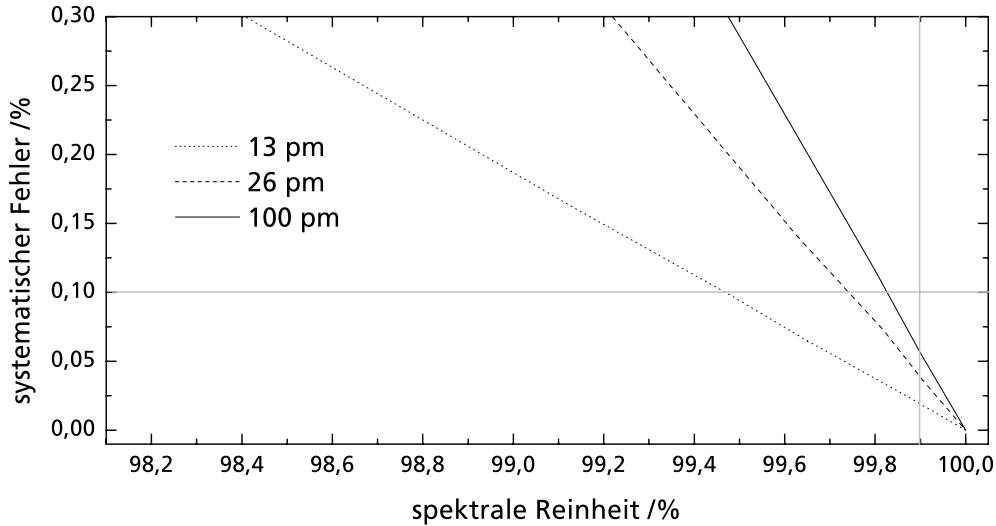


Abbildung 2.12: Systematischer Fehler in Abhängigkeit von der spektralen Reinheit verursacht durch OPO-Seitenmoden, für verschiedene Abstände der Seitenmoden von der zentralen Mode (Targetabstand: 2,5 km)

Messgerät-Target-Abstand von 2,5 km. In blau ist der Fehler für 100 pm Seitenmodenabstand dargestellt. Hier erfolgt keine relevante Absorption mehr durch die Linie. Daher kann das auch als der Fall eines Laserspektrums mit einer schmalen zentralen Mode und einem breitbandigen Untergrund angesehen werden.

Um also einen resultierenden Fehler von $\leq 0,1$ % für einen maximalen Messgerät-Target-Abstand von 10 km zu erreichen, ist eine spektrale Reinheit von $\geq 99,9\%$ nötig.

Empfindlichkeit gegenüber Variationen der Reflektivität

Ein wesentlicher Aspekt der hier angewandten Messmethode ist, die von einem topografischen Target (Bäume, Wiesen, Felder, Gebäude, Straßen usw.) zurück gestreute Laserstrahlung auszuwerten. Der Reflektivität ρ der bestrahlten Oberfläche fällt dadurch eine große Bedeutung zu. Durch die Methode der *differentiellen Absorption* muss ihr absoluter Wert zwar weder bekannt noch zeitlich konstant sein, jedoch muss sie für jeweils ein Online-Offline-Messwerte-Paar möglichst identisch sein. Das ist bei einer realen Messung nicht immer gewährleistet. Die erlaubte Abweichung der Reflektivität für ein Messwerte-Paar soll im Folgenden näher untersucht werden.

Ein Verhältnis der Online- und Offline-Reflektivitäten ungleich eins führt dazu, dass der Logarithmus in Gleichung 1.24 um den zusätzlichen Term $\ln(\rho_{on}/\rho_{off})$ erweitert werden muss. Die relative Abweichung der CO₂-Teilchendichte durch unterschiedliche Reflektivitäten verhält sich somit folgendermaßen [8]:

$$\frac{\delta N}{N} = \left| \frac{1}{2 \Delta \tau} \cdot \ln \left(\frac{\rho_{on}}{\rho_{off}} \right) \right| \quad (2.16)$$

Es lässt sich nun eine Toleranzgrenze für ein Reflektivitätsverhältnis berechnen:

$$\frac{\rho_{on}}{\rho_{off}} < \exp(2 \Delta \tau \cdot (\delta N/N)_{max}) \quad (2.17)$$



Abbildung 2.13: Illustration eines sehr kleinen Überlappens der Flächen, die bei einer IPDA-Messung von den Online- (t_1) und Offline-Laserimpulsen (t_2) beleuchtet werden; zudem liegt ein strukturierter Boden vor

Mit der Annahme, dass eine optimale differentielle optische Dicke $\Delta\tau = 1$ gewählt wurde, ergibt sich verallgemeinert:

$$\frac{\delta N}{N} < 0,1\% \Rightarrow \frac{|\rho_{on} - \rho_{off}|}{\rho_{on}} < 0,2\% \quad (2.18)$$

Für die in dieser Arbeit beschriebenen Mess-Konfigurationen mit $\Delta\tau \approx 0,25$ ergibt sich eine erhöhte Anforderung an die Abweichung von 0,05%.

Für die ausgewählten Messwellenlängen (s. Abschn. 2.4.1) ergeben Simulationsrechnungen die in Abbildung 2.14 gezeigten Abhängigkeiten des systematischen Fehlers. Entscheidend ist der Messgerät-Target-Abstand. Je kleiner der Abstand, desto schwächer ist der Kontrast zwischen den Online- und Offline-Messsignalen und ein gegebener Reflektivitätsunterschied wirkt sich verstärkt aus.

Des Weiteren ist zu betrachten, unter welchen Umständen derartige Abweichungen bei realen Messkonfigurationen auftreten können und wie stark sie sein können. Sie können entstehen durch:

- Wellenlängenabhängigkeit der Reflektivität des Targets
- Veränderung des Targets durch eine Bewegung des Messsystems (vgl. Abb. 2.13)
- Veränderung des Targets durch eine Bewegung des Targets

In Anbetracht der geforderten Messgenauigkeit ist es außerdem nicht auszuschließen, dass bereits ein Target, das über die Fläche des Laserspots eine inhomogen verteilte Reflektivität aufweist, Fehler verursacht, wenn die Online- und Offline-Laserimpulse unterschiedliche Strahlprofile, also verschiedene Intensitätsverteilungen über den Querschnitt

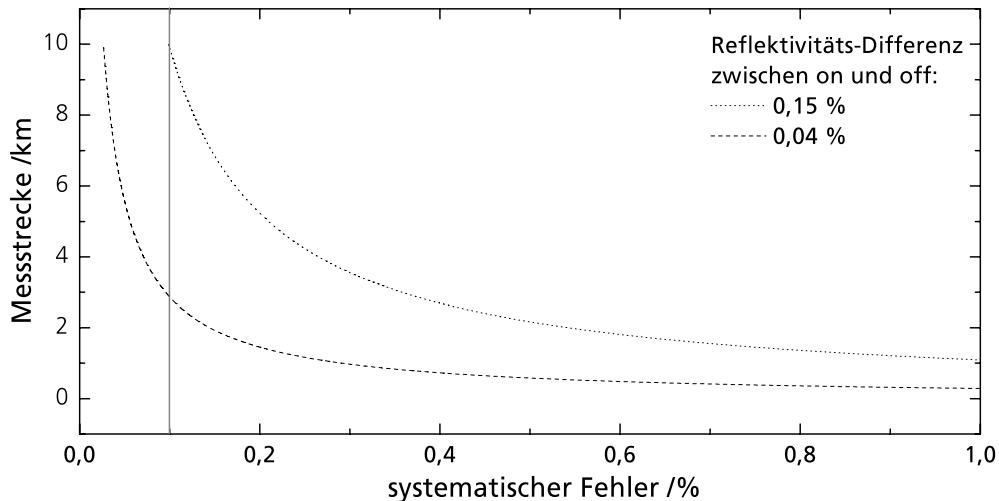


Abbildung 2.14: *Abhängigkeit des systematischen Fehlers aufgrund von Reflektivitäts-Differenzen des Targets für Online- und Offline-Messimpulse von der Länge der Messstrecke und der Größe der Reflektivitäts-Differenz*

des Laserstrahls, aufweisen. Dazu finden sich in der Literatur bisher keine Untersuchungen. Die Ergebnisse der Validierungsmessungen lassen hierzu erste Schlüsse zu (s. Abschn. 5.1.3). Bei einer zukünftigen Weiterentwicklung der IPDA-Methode sollte diese Problematik näher untersucht werden.

Die Problematik der Wellenlängenabhängigkeit der Reflektivität topografischer Targets wurde von Grant [52] diskutiert. Aufgrund des hier verwendeten geringen Abstandes der Online- und Offline-Wellenlängen (ca. 0,15 nm) ist allerdings nicht zu erwarten, dass es zu relevanten Differenzen der Target-Reflektivität kommt. Passende hochaufgelöste Daten für topographische Targets gibt es jedoch sehr wenige. Menyuk und Killinger [92] geben für den Bereich um 1,6 μm eine Reflektivitäts-Variation für topographische Targets von 0,01% pro nm Wellenlänge an. Für zukünftige Weiterentwicklungen dieser Messmethode sind daher experimentelle Untersuchungen diesbezüglich erforderlich.

Bei einer ruhenden Messplattform, wie der im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten, spielen höchstens Inhomogenitäten der Laserstrahlung oder eventuelle Abweichungen im Strahlverlauf (Pointing) der Online- und Offline-Impulse in Kombination mit inhomogenen Reflektivitäten des Targets eine Rolle. Aufgrund der ungenügenden Kenntnis der beteiligten Parameter sind theoretische Berechnungen der dadurch möglicherweise auftretenden Messfehler nicht sehr aufschlussreich.

Bezüglich einer bewegten Messplattform, wie sie bei einer Flugzeug oder Satelliten getragenen Anwendung vorliegt, können die Auswirkungen von variablen Reflektivitäten des Bodens jedoch auf vereinfachte Weise simuliert werden, wie im Folgenden gezeigt wird.

Auswirkung variabler Bodenreflektivität bei IPDA-Messungen

Für eine exemplarische Abschätzung wurde ein Luftbild des DLR-Geländes in Oberpfaffenhofen derart bearbeitet, dass die Grauwerte in etwa den real auftretenden Reflektivitäten verschiedener Oberflächen des Bodens (Daten aus ASTER Spectral Library

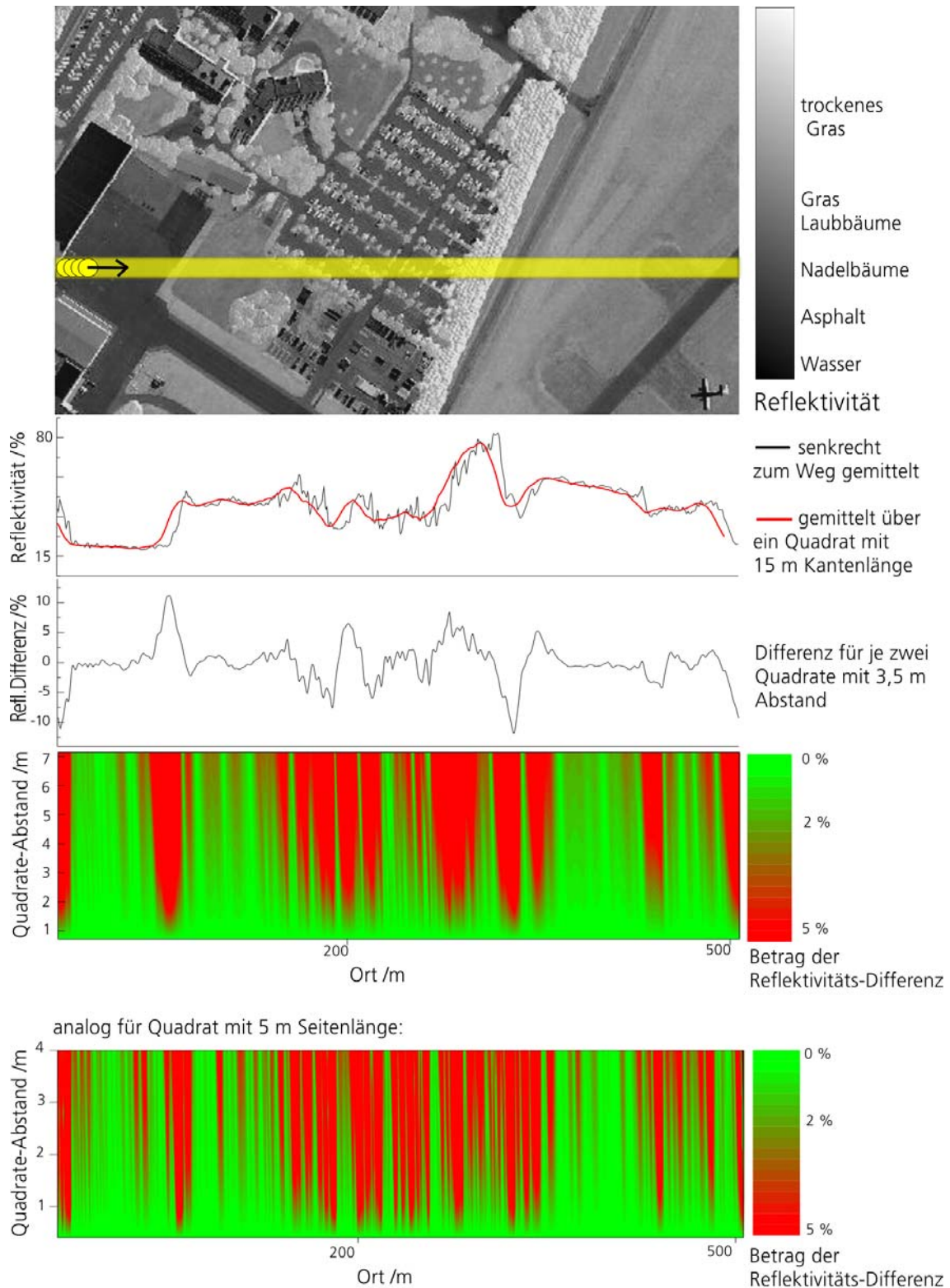


Abbildung 2.15: Auswirkung variabler Boden-Reflektivität – von oben nach unten: Spur der Laserimpulse am Boden, korrespondierende Boden-Reflektivität, Reflektivitäts-Differenzen bei einem räumlichen Abstand von 3,5 m zwischen den Messimpulsen, Reflektivitäts-Differenzen in Abhängigkeit vom räumlichen Messimpuls-Abstand (für vom Laser ausgeleuchtete Quadrate mit 15 m und 5 m Kantenlänge)

[93]) für den Bereich um $1,6 \mu\text{m}$ entsprechen. Es wurde angenommen, dass eine quadratische Fläche mit 15 m Seitenlänge von den Laserimpulsen homogen ausgeleuchtet wird. Ein möglicher Überflug mit 500 m Länge ist in Abbildung 2.15 dargestellt. Zu sehen ist außerdem die auftretende Reflektivität entlang der Strecke, die auftretenden Reflektivitäts-Differenzen für je zwei der Quadrate mit 3,5 m Abstand zueinander und die Reflektivitäts-Differenz aufgeschlüsselt in Abhängigkeit vom Abstand der Quadrate zueinander. Das entspricht prinzipiell dem Reflektivitäts-Unterschied für Online- und Offline-Messimpulse, der bei einer entsprechenden Messung auftreten würde.

Das Beispiel zeigt, dass das Problem die auftretenden starken Reflektivitäts-Sprünge entlang des Weges sind. Die Gradienten erzeugen Reflektivitäts-Differenzen innerhalb der Online-Offline-Paare. Da die Sprünge allerdings positive und negative Werte haben, können sie sich durch Mittelungen, abhängig von der Beschaffenheit des Bodens und der Länge des Mittelungs-Intervalls, teilweise gegenseitig aufheben. Für das betrachtete Beispiel ergibt sich nach Mittelung über die gesamte Strecke und einem Messimpuls-Abstand von 3,5 m eine restliche Differenz in der Reflektivität zwischen Online und Offline von $-0,16 \%$.

Gemäß dieser Betrachtungen wäre für die in Tabelle 2.5 angegebenen Konfigurationen bei Mittelung über das gesamte oben gezeigte Intervall mit 500 m Länge ein systematischer Messfehler des CO_2 -Gehaltes der Luft von maximal $0,1 \%$ zu erreichen.

	Konfiguration A	Konfiguration B
Flughöhe	10 km	3 km
Geschwindigkeit	240 m/s	80 m/s
On-Off-Impulsabstand (Ort)	3,5 m	1,2 m
On-Off-Impulsabstand (Zeit)	14 ms	15 ms
Spotgröße am Boden	15 m	5 m
Strahldivergenz	1,5 mrad	1,7 mrad

Tabelle 2.5: *Ergebnis der Beispielsimulation für einen minimalen systematischen Fehler aufgrund einer variablen Bodenreflektivität*

Es kommt also sehr auf die Auslegung des Systems an, insbesondere auf den zeitlichen Abstand zwischen den Online- und Offline-Laserpulsen und damit den räumlichen Abstand der Zentren der beleuchteten Flächen auf dem Boden. Zusammen mit der Größe dieser Flächen ergibt sich ein Unterschied in den beleuchteten Flächen, die unter Umständen verschiedene Reflektivitäten haben können (s. a. Abb. 2.13). Das ist ein Nachteil der Hard-Target-Technologie, der gut charakterisiert werden muss.

Als Ergebnis dieser Simulation ergeben sich folgende allgemeine Rückschlüsse: Je größer der Laserspot am Boden ist, desto weniger stark sind die Reflektivitäts-Gradienten ausgeprägt. Je kleiner der Abstand zwischen zwei Messimpulsen ist, desto größer ist das Überlappen der beleuchteten Flächen, was eine kleine Reflektivitäts-Differenz für die Messwerte-Paare bedeutet. Je größer der Messgerät-Boden-Abstand ist, desto weniger stark wirken sich Reflektivitäts-Differenzen innerhalb eines Messwerte-Paares auf den resultierenden Fehler aus.

Genauigkeit der Leistungs-Messung

Im Gegensatz zu einem DIAL-System mit Ortsauflösung, bei dem die Leistung jedes Streckenabschnittes als Referenz für den jeweils folgenden Streckenabschnitt dient, muss bei einem IPDA-System die Leistung jedes Messimpulses gemessen werden, bevor er die Messstrecke durchläuft. Für einen Messwert der Teilchendichte bzw. des Mischungsverhältnisses werden also diese vier Größen gemessen: P_{on} und P_{off} als die empfangenen Leistungen der Target-Reflexe für Online und Offline (also die Impulse, die die Messstrecke durchlaufen haben) und P_{on}^{ref} und P_{off}^{ref} als ihre gemessenen Leistungs-Referenzwerte. Die zusätzlichen Referenzmessungen erhöhen den statistischen Fehler, was bereits in Abschnitt 2.1.2 behandelt wurde. Es kann allerdings auch ein systematischer Fehler auftreten, der im Folgenden diskutiert wird. Es gilt:

$$P_{on}^{ref} = q_{on} \cdot P_{0, on} \quad \text{und} \quad P_{off}^{ref} = q_{off} \cdot P_{0, off} \quad (2.19)$$

mit q_{on} und q_{off} als die Anteile der für die Referenzmessung abgezweigten Leistung von der gesamten emittierten Leistung $P_{0,x}$ (siehe z.B. Abbildung 3.9). Wenn $q_{on} = q_{off} = q$ gilt, erfolgt bei der Berechnung gemäß Gleichung 2.3 im Prinzip eine komplette Selbstkalibrierung, d.h. weder die Leistungsschwankungen der einzelnen Messimpulse spielen eine Rolle noch muss der Anteil der für die Referenzmessung abgezweigten Leistung q von der Gesamtleistung bekannt sein. Bedingt durch räumliche Variationen der Laserstrahlung in Kombination mit der entsprechenden Optik, die die Leistung für die Referenzmessung abzweigt, kann es aber passieren, dass $q_{on} \neq q_{off}$ und dass sich die Differenz unter Umständen zudem verändert. Ersteres würde einen konstanten Bias auf den Messergebnissen erzeugen (was wiederum durch eine Kalibrierungsmessung korrigiert werden kann), Zweiteres eine unbekannte, nicht korrigierbare Variation der resultierenden Messwerte.

Zur Berechnung der erlaubten Abweichung: Ein unbekanntes Verhältnis der Anteile der für die Referenzmessung abgezweigten Leistungen für Online und Offline $q' = q_{on}/q_{off}$ führt zu einem Fehler der gemessenen Teilchendichte von

$$\frac{\delta N}{N} = \frac{1}{2 \Delta\tau} \cdot \ln |q'| \quad (2.20)$$

Das bedeutet, es muss gelten

$$q' < \exp(2 \Delta\tau \cdot (\delta N/N)_{max}) \quad (2.21)$$

Um also einen Fehler der Teilchenzahl von unter 0,1% zu erreichen, dürfen bei einer optischen Dicke von 1 (einfache Wegstrecke) die Anteile der abgezweigten Leistung für die Referenzmessungen für Online und Offline maximal 0,2% voneinander abweichen. Daher sind in diesem Punkt höchste Anforderungen an die Strahlqualität und die Präzision im Aufbau der entsprechenden optischen Elemente gestellt.

Genauigkeit der Entfernungsbestimmung

Das in dieser Arbeit angewandte Messverfahren auf der Basis gepulster Laserstrahlung hat gegenüber der Verwendung von kontinuierlicher Laserstrahlung den großen Vorteil,

dass die Länge der Absorptionsstrecke ermittelt werden kann. Diese Länge muss sehr exakt bekannt sein, da sich die Teilchenzahl auch innerhalb einer sehr langen Säule auf einer Skala von einigen Metern bereits um Beträge ändert, die im Bereich der geforderten Messgenauigkeit liegen. So enthalten beispielsweise die untersten 7 m einer vertikalen, 10 km hohen Säule 0,1 % der Teilchen (US-Standard-Atmosphäre [60]).

Die Entfernung R zwischen IPDA-System und Target wird aus der Laufzeit der Laserimpulse, also der zeitlichen Differenz der detektierten Signale ermittelt:

$$R = c/2 \cdot (t_{Target} - t_{ref}) \quad (2.22)$$

wobei t_{Target} der Zeitpunkt des empfangenen Target-Reflexes und t_{ref} der Zeitpunkt der korrespondierenden Leistungsreferenz-Messung ist.

Da die beschriebene Messmethode auf topografische Targets angewiesen ist, die meist eine räumliche Struktur aufweisen, also keine homogene, ebene Fläche senkrecht zur Messstrecke darstellen, zeigt der Target-Reflex gegenüber dem ausgesandten Laserimpuls eine entsprechende Struktur, die mit einer zeitlichen Verbreiterung einhergeht. In der Literatur wird diese Thematik z.B. im Kontext von Laser-Altimetern zur Vermessung der Topografie der Erdoberfläche und der Bodenbedeckung durch Vegetation behandelt [94, 95].

Im Rahmen dieser Arbeit konnte der Einfluss des Targets auf die Veränderung der Messimpulse und damit auf die Quantifizierung des CO₂-Gehaltes nicht mehr näher untersucht werden. Für die korrekte Erfassung der Entfernung ist in jedem Fall ein ausreichend gutes zeitliches Auflösungsvermögen der Datenerfassung eine Voraussetzung. Um im Falle eines ebenen, unstrukturierten Targets eine Entfernungs-Genauigkeit von besser als 7 m zu erreichen, ist beispielsweise eine Samplingrate von mindestens 20 MHz nötig.

2.4 Ergebnisse und Schlussfolgerungen

Anhand der im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Simulationen konnte gezeigt werden, dass im Hinblick auf die untersuchten Aspekte eine CO₂-Messung mittels IPDA mit einer Genauigkeit im Sub-Prozentbereich möglich ist. Es wurden Absorptionslinien gefunden, die bezüglich Temperaturempfindlichkeit und Wasserdampf-Querempfindlichkeit optimiert sind. Zudem wurden gerätespezifische Fehlerquellen untersucht. Daraus lassen sich Vorgaben für die technische Auslegung des Systems ableiten. Die wesentlichen Aspekte sind in den folgenden Abschnitten zusammengefasst.

2.4.1 Optimierte Messwellenlängen und resultierende Empfindlichkeiten

Betrachtet man die vorangegangenen Abschnitte, ergibt sich, dass für CO₂-Messungen im nahen Infrarot prinzipiell drei Absorptionsbanden geeignet sind: 1,57 μm , 1,60 μm und 2,05 μm , wobei ein optimaler Kompromiss bezüglich Temperatur- und Wasserdampf-Querempfindlichkeit bei 2,05 μm deutlich schwieriger zu erreichen ist. Möchte man allerdings aufgrund der Möglichkeit der Gewichtung der bodennahen Bereiche für Online

eine Linienflanke nutzen (vgl. Abschn. 1.3.5), so ist diese Bande wegen der stärkeren Absorptionsquerschnitte zu bevorzugen.

Ambrico et al. [24] identifizierten bei der Ermittlung geeigneter Messwellenlängen ebenfalls Linien dieser drei Absorptionsbanden als optimal.

Konsequenzen der Wasserdampf-Querempfindlichkeit

Dieser Punkt stellt sich als ein zentrales Problem bei der Optimierung der Messwellenlängen dar. Die möglichen Bereiche werden dadurch stark eingeschränkt, es lassen sich jedoch einzelne Absorptionslinien finden, die eine Messung mit ausreichend kleiner Wasserdampfabhängigkeit erlauben.

Wie gezeigt wurde, ergibt sich für einige Linien in den Absorptionsbanden bei bei **1,57 μm und 1,6 μm** ein systematischer Messfehler von **< 0,1 %**, trotz Vorliegen eines tropischen Wasserdampfgehaltes, dessen Einfluss nicht korrigiert wird (gilt für die Bestimmung der CO_2 -Teilchendichte sowie des CO_2 -Mischungsverhältnisses in feuchter Luft). Eine genaue Auflistung der resultierenden Messfehler für mögliche Wellenlängen-Paare ist in Anhang C zu finden.

Bei der Angabe des Mischungsverhältnisses eines Spurengases kommt das prinzipielle Problem hinzu, dass es oft auf trockene Luft bezogen wird – gemeint ist also das Verhältnis der Anzahl der Spurengas-Moleküle zur Anzahl der Teilchen aller Luftbestandteile ohne Wasserdampf. Hierbei ist die Kenntnis des Wasserdampfgehaltes nötig. Diese Problematik gilt universell für jede Messmethode zur Bestimmung von Spurengas-Mischungsverhältnissen. Falls das Mischungsverhältnis in trockener Luft die zu bestimmende Größe sein soll, sind weitere Simulationen bezüglich der Anforderung an die Genauigkeit des erforderlichen Wasserdampfprofils nötig.

Konsequenzen der Temperaturabhängigkeit

Bei der Auswertung der Messdaten ist es stets nötig, das Temperaturprofil entlang der Messstrecke zu kennen. Die Anforderungen an die Genauigkeit des Temperaturprofils ist durch die richtige Wahl der Absorptionslinie minimal.

Für die Linien der Banden bei 1,57 μm und 1,6 μm ergeben sich für den allgemeinen Fall, dass der Einfluss benachbarter Linien unberücksichtigt bleibt, maximal die in Tabelle 2.6 angegebenen Fehler für die Messung der CO_2 -Teilchendichte N bzw. des CO_2 -Mischungsverhältnisses mr bezüglich einer Temperaturunsicherheit von $\Delta T = 1 \text{ K}$.

Die konkreten resultierenden Fehler für verschiedene Absorptionslinien mit Angabe der jeweils optimierten Online- und Offline-Wellenlängen sind in Anhang C aufgelistet.

Konsequenzen der Druckabhängigkeit

Der systematische Fehler aufgrund der Druckabhängigkeit des Absorptionsquerschnittes unterscheidet sich nur schwach für die verschiedenen Absorptionslinien, aufgrund jeweils ähnlicher Werte der Parameter γ_{air} und γ_{self} . Eine große Abhängigkeit ist dagegen festzustellen, wenn die Lage der Online-Wellenlänge auf der Absorptionslinie variiert wird (Zentrum, Flanke). Der resultierende Messfehler bei einem fehlerhaft angenommenen Druck-

E'' / cm^{-1}	Messung von N	Messung von mr
43	0,02 %	0,4 %
61	0,02 %	0,3 %
80	0,1 %	0,3 %
106	0,2 %	0,2 %
197	0,3 %	0,1 %
234	0,4 %	0,02 %
274	0,4 %	0,1 %

Tabelle 2.6: *Resultierender relativer systematischer Fehler einer CO_2 -Messung bei einer Unsicherheit im angenommenen Temperaturprofil von 1 K für Linien mit verschiedenen E''*

profil (bzw. Bodendruck) hängt also von der speziellen Wahl der Online- und Offline-Wellenlängen ab. Zudem ergibt sich ein Unterschied zwischen der Bestimmung der Teilchendichte und des Mischungsverhältnisses aufgrund der Tatsache, dass die für die Berechnung benötigte Teilchendichte der Luft gemäß der idealen Gasgleichung auch vom Luftdruck abhängt.

Position	Wellenlänge	Fehler bei Messung von N	Fehler bei Messung von mr
Online			
Zentrum	1,57 μm - u. 1,6 μm -Bande	0,1 % bis 0,15 %	0,005 % bis 0,01%
Flanke	z.B. on: 2051,0296 nm off: 2051,22 nm	0,06 %	0,2 %

Tabelle 2.7: *Resultierender relativer systematischer Fehler einer CO_2 -Messung bei einer Unsicherheit im angenommenen Druckprofil von 1 hPa*

Die Sensitivität des Messergebnisses gegenüber einer Unsicherheit im angenommenen Bodendruck von $\Delta p = 1$ hPa ist in Tabelle 2.7 dargestellt. Für eine Messung mit Online im Linienzentrum ergibt sich bei der Bestimmung der Teilchendichte ein maximaler Fehler von 0,15 %, während hier der Fehler bei der Bestimmung des Mischungsverhältnisses zu vernachlässigen ist. Liegt die Online-Wellenlänge auf der Linienflanke, hängt der Fehler von der konkreten Wahl der Messwellenlängen ab. Es lassen sich jedoch auch hier Fehler im Subprozent-Bereich erreichen.

Zusammenfassung

Eine Übersicht über die Unterschiede, die sich für die verschiedenen Wellenlängenbereiche ergeben, ist in Tabelle 2.8 zu sehen.

Die Beurteilung bezüglich des Messsystems basiert auf technischen Betrachtungen. Hier spielt die bereits in der Einleitung erwähnte Verfügbarkeit leistungsfähiger Detektoren die wesentliche Rolle (Nachteile bei 2 μm und darüber hinaus). Zudem gibt es technische Faktoren bzgl. des Lasersystems, die zu einer Bevorzugung der 1,57 μm -Bande führen (s. Kapitel 3).

Bande	Optimierung gesamt	Position Online	Temp.- Empf.	H ₂ O- Interfer.	Druck- Empf.	Messsystem
1,57 μm	+	Zentrum	+	+	+	++
1,60 μm	+	Zentrum	+	+	+	+
2,05 μm	o	Flanke	+	o	+	o

Tabelle 2.8: Ergebnisse für die verschiedenen möglichen Messwellenlängen-Bereiche; (+) Parameter ist positiv zu bewerten, (o) Parameter ist mit Einschränkungen verbunden

Die Wellenlängenpaare in Tabelle 2.9 wurden mit Hilfe der durchgeführten Simulationen als optimal für eine Messung von atmosphärischem CO₂ identifiziert bei einer vertikalen Messung vom Flugzeug aus bzw. in horizontaler Richtung in Bodennähe.

Online	Offline	E'' /cm ⁻¹	Temperatur	Wasserdampf	Messung von
1572,9935 nm	1573,16 nm	61	0,01 %	0,02 %	<i>N</i>
1571,1110 nm	1571,29 nm	234	< 0,01 %	0,02 %	<i>mr</i>
1603,2264 nm	1603,32 nm	60	0,02 %	< 0,01 %	<i>N</i>
1611,5154 nm	1611,61 nm	274	0,04 %	0,1 %	<i>mr</i>

Tabelle 2.9: Ergebnis der Messwellenlängen-Optimierung für eine Messung der Teilchendichte *N* bzw. des Mischungsverhältnisses *mr*: jeweils erreichbare systematische Fehler

2.4.2 Optimierter statistischer Messfehler

Die maximal erreichbare Ausgangsleistung des im Rahmen dieser Arbeit realisierbaren Laborsystems in Kombination mit der Größe der zur Verfügung stehenden Teleskope (das Produkt aus diesen beiden Größen wird auch als „power aperture product“ bezeichnet) ist für ein DIAL-System, das als Messsignal die atmosphärische Rückstreuung nutzt, bei Weitem nicht ausreichend, da die Rückstreuung im Bereich der möglichen Messwellenlängen zu schwach ist. Auch die Nutzung spezieller atmosphärischer Gegebenheiten, wie z.B. Nebel, dünne Wolken o.ä. hat kein geeignetes Rückstreusignal zur Folge (siehe Anhang D.3). Um die benötigte Messgenauigkeit zu erreichen, ist daher ausschließlich die Nutzung eines Hard-Target-Reflexes (IPDA) in Betracht zu ziehen.

In Abbildung 2.16 sind die Berechnungen des relativen statistischen Fehlers der CO₂-Teichendichte bzw. des CO₂-Mischungsverhältnisses für verschiedenen Konfigurationen zu sehen. Dargestellt ist der Fehler für Messungen in horizontaler Richtung in Abhängigkeit vom Messgerät-Target-Abstand sowie der Fehler für eine vertikale Messung (von einem Flugzeug aus nach unten) in Abhängigkeit von der Flughöhe. Außerdem ist jeweils die Abhängigkeit vom atmosphärischen Aerosol dargestellt. Hierfür wurden vertikale Aerosol-Profile verwendet (ESA RMA [8]). Hierbei liegt eine Einteilung in verschiedene Aerosol-Gehalte der Atmosphäre vor, die sich an der Häufigkeit des jeweiligen Auftretens orientiert („lower quartile“: in 25 % der Fälle liegt die Aerosol-Extinktion unter dem entspr. Wert,

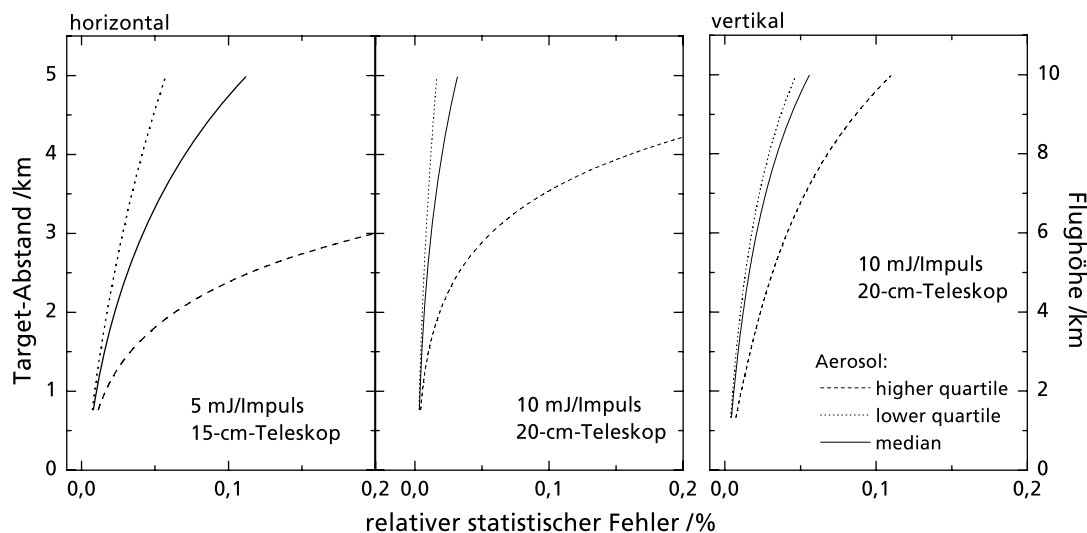


Abbildung 2.16: *Simulationsergebnisse: Relativer statistischer Fehler für Messungen in horizontaler Richtung (in Bodennähe) und in vertikaler Richtung in Abhängigkeit vom Messgerät-Target-Abstand bzw. der Flughöhe für verschiedene Aerosol-Belastungen der Atmosphäre (Geräte-Parameter s. Tabelle 2.10)*

„median“: 50 % der Fälle haben eine Extinktion über bzw. unter dem entspr. Wert, „higher quartile“: in 25 % der Fälle liegt die Extinktion über dem entspr. Wert). Tabelle 2.10 zeigt wesentliche in der Simulation verwendete Parameter.

Die angenommene Reflektivität von 25 % ergibt sich gemäß [93] aus den Reflektivitäten für Laubbäume (30 %) sowie für Nadelbäume (20 %). Als räumliche Auffächerung des Targets in Strahlrichtung wird ein Wert von 5 m angenommen. Bei dem angegebenen

Wellenlänge	on: 1572,9918 nm off: 1573,16 nm
Transmitter	
Energie	5 mJ/Impuls, 10 mJ/Impuls
Impulsrate	10 Hz
Impulslänge	10 ns
Target	
Reflektivität	25 %
Auffächerung	5 m
Empfänger	
Teleskop-Durchmesser	15 cm, 20 cm
Transmission der Optik	0,8
Filter-Transmission	0,7
Bandbreite	3 MHz
Detektor	PIN (Hamamatsu G8605-11)
Mittelung	3000 Messwerte (10 min)

Tabelle 2.10: *Parameter für die in Abbildung 2.16 gezeigten Simulationen*

Detektor handelt es sich um ein handelsübliches Modell einer PIN-Diode. Eine höhere Empfindlichkeit wird mit Avalanche Photodioden (APD) erreicht, die allerdings nur mit vergleichsweise kleinen photoaktiven Flächen erhältlich sind, was deutlich höhere Anforderungen an die fokussierende Optik bedeutet. Ein Vergleich der Messempfindlichkeiten bei der Verwendung einer PIN-Diode bzw. APD ist in Anhang D.2 gegeben.

Die Simulationen zeigen im Wesentlichen, dass der statistische Fehler im Falle von Hard-Target-Messungen nicht der limitierende Faktor bezüglich der Messempfindlichkeit ist. Mit einer relativ kleinen Ausgangsleistung und einem moderatem Teleskop-Durchmesser lassen sich für vertikale Messungen bis aus 10 km Höhe sowie für horizontale Messungen in Bodennähe bereits statistische Fehler von unter 0,1% erreichen.

2.4.3 Definition von Anforderungen an das Messsystem

Anhand der Simulationen konnte eine Vielzahl von Anforderungen an das geplante Messsystem aufgestellt werden. Die wichtigsten sind hier zusammengestellt.

Wellenlänge: Es muss eine Laserlichtquelle gefunden werden, die eines der genannten, bezüglich Temperatur- und Wasserdampf-Empfindlichkeit optimierten Messwellenlängen-Paare im Bereich von 1,57 μm oder 1,6 μm erzeugt.

Stabilität: Die Messwellenlängen müssen für das Erreichen eines systematischen CO₂-Messfehlers von jeweils unter 0,1 % die in Tabelle 2.11 angegebenen Genauigkeiten aufweisen.

	Messung horizontal	Messung vertikal, 10 km
Online, Offset	< 70 MHz	< 35 MHz
Online, Jitter	< 100 MHz	< 50 MHz
Offline	< 2 GHz	< 3 GHz

Tabelle 2.11: Anforderungen an die Wellenlängenstabilität

Zudem müssen Messmethoden gefunden werden, die die Einhaltung dieser Anforderungen nachweisen können.

Spektrale Reinheit: Für einen Messfehler von kleiner als 0,1 % ist eine spektrale Reinheit von $\geq 99,9$ % zu erreichen. Dafür ist ein geeignetes Nachweissystem zu finden.

Ausgangsleistung: Um ein genügend starkes Messsignal für das Erreichen eines maximalen statistischen Fehlers von 0,1 % zu erhalten, ist eine Impulsenergie von 5-10 mJ nötig bei einer Messstrecken-Länge von 2-3 km, falls Bäume als Target verwendet werden.

Empfangsoptik: Benötigt wird eine Optik, deren Sichtfeld (*field of view*, FOV) groß genug ist, um den gesamten Target-Reflex auf den Detektor abzubilden für eine

maximale Ausnutzung der ausgesandten Energie. Bei der Berechnung des statistischen Fehlers wurde ein Teleskop-Durchmesser von 15 bis 20 cm als ausreichend festgestellt.

Detektor: Um die nötige Signalstärke zu erhalten, muss ein Detektor für den Bereich um $1,6 \mu\text{m}$ mit den in der Simulation angenommenen oder besseren Eigenschaften verwendet werden (z.B. die kommerziell erhältliche PIN: Hamamatsu G8605-11 oder APD: Perkin Elmer C30662E).

Leistungsmessung: Um einen systematischen Fehler von unter 0,1 % zu erreichen, ist eine hochpräzise Leistungsmessung erforderlich. Erlaubt ist ein maximaler Unterschied in den für die Leistungsmessung abgezweigten Anteilen der Online- und Offline-Impulse von 0,2 % (für $\Delta\tau = 1$) bzw. 0,03% (für $\Delta\tau = 0,13$, z.B. bei der Validierungsmessung).

Entfernungsbestimmung: Für eine ausreichend präzise Bestimmung der Länge der Absorptionsstrecke ist eine Signalerfassung mit einer Samplingrate von mindestens 20 MHz erforderlich.

Kapitel 3

Experimenteller Aufbau

Die zentrale Aufgabe dieser Arbeit war die Realisierung eines Laborsystems zur Untersuchung der Messmethode. Es galt eine Konfiguration zu finden, die die im vorigen Kapitel definierten Eigenschaften möglichst gut erfüllen kann. Dafür mussten zum einen die richtigen Komponenten zusammengestellt werden, zum anderen musste das System aufgebaut und optimiert werden. Am Ende dieses Prozesses stand ein Gerät zur Verfügung, mit dem erste erfolgreiche Messungen an den tageszeitlichen Variationen des atmosphärischen Kohlendioxid-Gehaltes vorgenommen werden konnten. Diese Messungen werden in Kapitel 4 behandelt.

In den folgenden Abschnitten wird zunächst auf die Auswahl und die Konfiguration der einzelnen Komponenten des Systems eingegangen. Anschließend werden als Ergebnis die messtechnisch quantifizierbaren Eigenschaften und die daraus gegebenenfalls resultierenden Messfehler aufgezeigt.

3.1 Auslegung des Systems

Das IPDA-Messprinzip erfordert einen Messaufbau, der in folgende Grundbausteine eingeteilt werden kann: Laserlichtquelle, Sende-/Empfangsoptik mit Detektion und Steuerung/Datenerfassung. Der Messaufbau soll nach dem Prinzip des Direktempfangs arbeiten [96] und für die Messung von CO₂-Säulengehalten entlang einer horizontalen Absorptionsstrecke mit einem topografischen Target am Ende der Messstrecke ausgelegt werden.

3.1.1 Wahl der Strahlquelle

Eine der wichtigsten Komponenten eines Lidarsystems ist die Strahlquelle. Daher kommt ihrer Auswahl eine besondere Bedeutung zu. Sie muss gepulstes Licht liefern, wobei *zwei* Ausgangswellenlängen erforderlich sind, die den in Abschnitt 2.4.1 definierten Wellenlängen für Online und Offline entsprechen. Dabei gelten höchste Anforderungen an die spektralen und räumlichen Eigenschaften der Strahlung.

Nach dem aktuellen Stand der Technik kommen für den Wellenlängen-Bereich bei 1,5 μm und 1,6 μm mehrere Lasersysteme in Frage [8]:

Direkte Erzeugung:

Er:YAG: Hier handelt es sich um einen Festkörperlaser auf der Basis eines mit Er^{3+} -Ionen dotierten YAG-Kristalls. Der damit bereits erreichte Wellenlängenbereich liegt zwischen 1625 nm und 1675 nm [97, 98]. Daher ist diese Methode ungeeignet. Es handelt sich zudem um eine relativ neue Technologie, deren Entwicklungsgrad derzeit noch niedrig ist.

Er:Yb:Glass: Es handelt sich ebenfalls um einen Festkörperlaser, wobei hier Erbium und Ytterbium dotiertes Glas eingesetzt wird. Der mögliche Wellenlängenbereich liegt zwischen 1528 nm und 1563 nm [99, 100], die geforderten Wellenlängen werden also nicht erreicht. Der Entwicklungsgrad ist höher als bei der zuvor genannten Methode.

Pumplaser und Frequenzkonverter:

Nd:YAG oder Yb:YAG + SSRL: Kombination aus Nd:YAG- oder Yb-YAG-Pumplaser mit Solid-State-Raman-Shifter als Frequenzkonverter auf der Basis eines nichtlinearen optischen Prozesses dritter Ordnung [101]. Einzelne Wellenlängen im Bereich zwischen 1570 nm und 1610 nm können erzeugt werden [102]. Es handelt sich um eine relativ neue Technik, deren Entwicklungsgrad bei Weitem nicht so hoch ist wie der der folgenden Methode.

Nd:YAG + OPO: Kombination aus einem Nd:YAG-System ($1,06 \mu\text{m}$) als Pumplaser mit einem OPO-System als Frequenzkonverter auf der Basis eines nichtlinearen optischen Prozesses zweiter Ordnung. Der geforderte Wellenlängenbereich kann damit lückenlos abgedeckt werden [58]. Es sind gute spektrale Eigenschaften für spektroskopische Anwendungen erreichbar [103] sowie ein gepulster Betrieb mit genügend Impulsenergie für atmosphärische Messungen [104]. Die Methode ist zudem theoretisch sehr gut erforscht und ausgereifter als die anderen erwähnten Möglichkeiten [75].

Die sich für die hier beschriebene Anwendung jeweils ergebenden Vor- und Nachteile sind in Tabelle 3.1 zusammengestellt.

System	Wellenlänge	spektr. Eigensch.	Leistung	Strahlprofil	Entwicklungsstand
Nd:YAG + OPO	+	+	+	○	+
Nd:YAG + SSRL	○	+	+	+	○
Er:Yb:Glass	–	+	+	+	○
Er:YAG	–		+	+	–

Tabelle 3.1: *Vergleich der verschiedenen Lasersysteme; (+) geeignet, (○) mit Einschränkungen geeignet, (–) für diese Anwendung ungeeignet*

Es zeigt sich, dass eine direkte Erzeugung von gepulster Laserstrahlung mit der nötigen Wellenlänge gemäß dem aktuellen Stand der Technik nicht möglich ist. Daher kommt

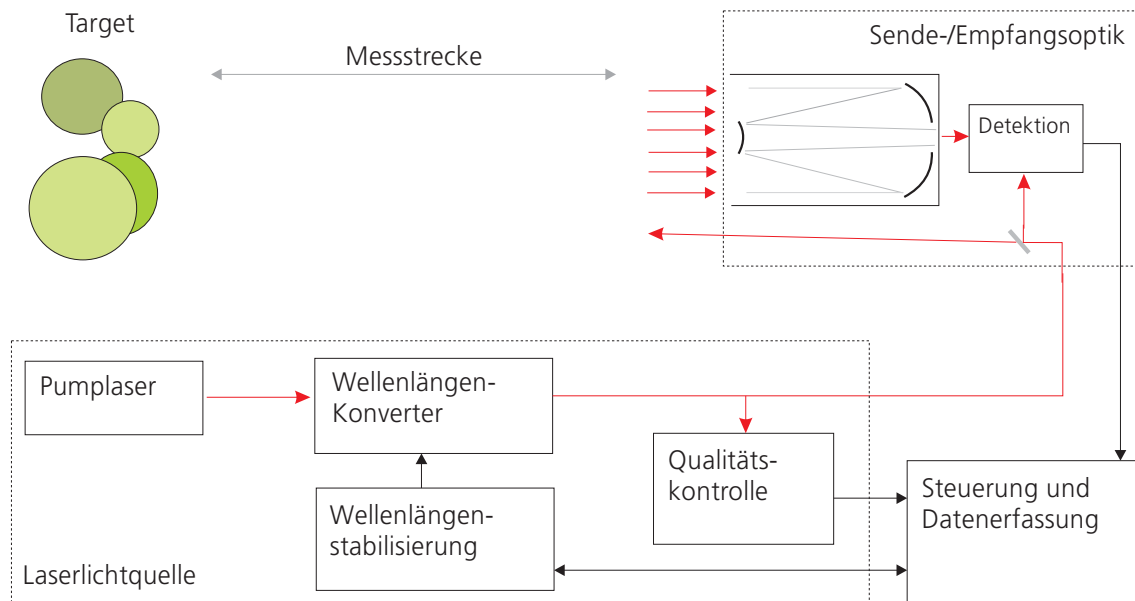


Abbildung 3.1: Übersicht über das Konzept des Messaufbaus

nur eine Kombination aus Pumplaser und Frequenzkonverter in Frage. Aufgrund des großen Potentials und der vorhandenen Ausstattung wurde entschieden, ein Nd:YAG-OPO-System mit einer Wellenlänge von $1,57 \mu\text{m}$ zu realisieren.

Dass OPO-Systeme für Lidar-Messungen grundsätzlich geeignet sind, wurde beispielsweise von Ehret et al. [105] (Messung atmosphärischen Wasserdampfs bei einer Wellenlänge von 940 nm) gezeigt. Die erfolgreiche Erzeugung von gepulster Laserstrahlung bei einer Wellenlänge von $1,57 \mu\text{m}$ mit einem Nd:YAG-OPO-System wurde beispielsweise von Harrel-Klein et al. [104] beschrieben. Ein Zweiwellenlängen-System für eine DIAL- oder IPDA-Messung von atmosphärischem CO_2 auf der Basis eines OPO-Systems existiert hingegen noch nicht.

3.1.2 Konzept des Messaufbaus

In Abbildung 3.1 ist eine schematische Übersicht der Komponenten des aufgebauten IPDA-Systems zu sehen. Die Aufgabe des Pumplasers ist, die nötige Energie für die Messimpulse zu liefern. Der Frequenzkonverter erzeugt die definierten Mess-Wellenlängen, was durch eine Wellenlängen-Stabilisierung unterstützt wird. Die Sendeoptik lenkt den Strahl auf die Messstrecke und zweigt einen kleinen Teil der Energie für die Leistungsreferenzmessung ab. Das Empfängersystem besteht aus Optiken zur Erfassung und Fokussierung der zurück gestreuten Strahlung und einem Detektor. Des Weiteren dienen verschiedene Systeme der Kontrolle der Laserstrahlqualität, der Steuerung des Systems sowie der Datenerfassung.

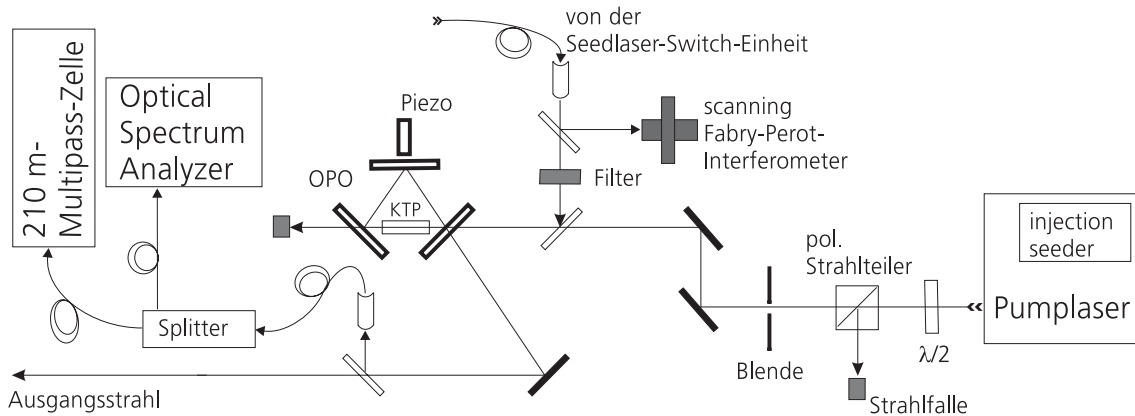


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der Laserlichtquelle mit eingezeichnetem Strahlverlauf

3.2 Beschreibung der Systemkomponenten

Die Komponenten des Systems werden in den folgenden Abschnitten einzeln diskutiert. In Abbildung 3.2 ist der gewählte Aufbau der Laserlichtquelle im Detail zu sehen.

3.2.1 Pumplaser

Als Pumplaser für ein OPO-System wird ein Laser mit hoher Impulsenergie, einmodiger Ausgangsstrahlung und gutem räumlichen Strahlprofil benötigt. Es wurde der blitzlampen-gepumpte Nd:YAG-Laser NY-61 von Continuum verwendet. Der integrierte Injection-Seeder gewährleistet einen einmodigen Betrieb. Der Laserresonator wird dabei mittels der Methode der „build-up time reduction“ auf die Seedlaser-Wellenlänge automatisch geregelt [106]. Wichtige Eigenschaften dieses Pumplasersystems sind in Tabelle 3.2 zusammengefasst.

Wellenlänge	1064,4 nm
Impulsrate	10 Hz
Impulsenergie	400 mJ
Impulslänge	8 ns
Seeder	Lightwave 101
Cavity-Kontrolle	via build-up time reduction
Strahldurchmesser	5 mm

Tabelle 3.2: Wichtige Eigenschaften des verwendeten Nd:YAG-Pumplasersystems

Da sowohl die Impulsenergie als auch der Strahldurchmesser des Lasers für das OPO-System zu groß sind, wurden folgende Maßnahmen zur Anpassung durchgeführt (siehe Abbildung 3.2). Der Strahldurchmesser wird durch eine Blende von 5 mm auf 3,5 mm reduziert. Eine regelbare Pump-Leistung wird mittels einer drehbaren $\lambda/2$ -Platte in Kombination mit einem Polarisationsstrahlteiler erreicht.

3.2.2 Optisch parametrischer Oszillator

Die theoretischen Grundlagen der OPO-Technologie wurden in Abschnitt 1.5 beschrieben. OPO-Systeme können auf verschiedene Art und Weise realisiert werden. Es ist zu entscheiden, in welcher Konfiguration der Resonator („Cavity“) vorliegen soll und welcher Kristall als nichtlineares Medium verwendet werden soll. Des Weiteren hängt die Art der Phasenanpassung vom Kristall und von der zu erzeugenden Wellenlänge ab.

Der Resonator wurde als Ring-Cavity aufgebaut. Das hat den Vorteil, dass Probleme durch starke Rückreflexe vermieden werden, die die Seedlaser beschädigen können [107]. Dadurch ist ein optischer Isolator mit vergleichsweise kleiner Dämpfung der Rückreflexe zum Schutz der Seedlaser ausreichend.

Modellrechnungen zur Auslegung von OPO-Systemen [67] ergaben, dass sich mit dem nichtlinearen Material Kalium Titanyl Phosphat (K₂TiOPO₄ oder KTP) der Wellenlängenbereich von 1,57 μm bei einer Pumpwellenlänge von 1064 nm sehr gut erzeugen lässt. Das und weitere gute Eigenschaften von KTP, wie die hohe Transparenz bei den beteiligten Wellenlängen und die hohe Zerstörschwelle [70], führten zu seiner Auswahl. Vorversuche zeigten, dass einige Linien der Absorptionsbande bei 1,57 μm durch nicht-kritische Phasenanpassung erreichbar sind. Verglichen mit der kritischen Phasenanpassung hat das den Vorteil, dass die Winkelabstimmung zwischen Kristallachse und Pumpstrahl entfällt, was den Aufbau vereinfacht. Aufgrund dessen und der erwarteten Vorteile bzgl. Strahlqualität und Konversionseffizienz (s. a. Abschn. 1.4.2) wurde diese Konfiguration für das hier vorgestellte Laborsystem ausgewählt.

Abbildung 3.3 zeigt den aufgebauten OPO schematisch. Der Resonator ist für die erzeugte Signal-Wellenlänge einfach resonant ausgelegt. Es wurden plane Spiegel eingesetzt. Die Idler-Wellenlänge bei 3,3 μm wird nicht verwendet. Detaillierte Untersuchungen ergaben, dass eine Reflektivität von 80 % des Ein-/Auskoppelspiegels (outp. c.) zu einem geeigneten Verhalten dieses OPO bezüglich der OPO-Schwelle und der Breite der OPO-Moden führt.

In dieser Konfiguration liefert der freilaufende OPO eine Strahlung mit etwa 0,2 nm (24 GHz) Halbwertsbreite. Damit ist die spektrale Breite der Strahlung um den Faktor 5 größer als die atmosphärische CO₂-Linie und somit für eine Messung von CO₂ ungeeignet. Die Methode des „Injection Seeding“ erlaubt es, die spektrale Breite eines OPO erheblich zu reduzieren (vgl. Abschn. 1.5.3). Von großer Bedeutung ist zudem, dass mit dieser Methode die beiden benötigten Wellenlängen, Online und Offline, mit derselben OPO-Konfiguration erzeugt werden können, indem verschiedene Resonatormoden geseedet werden. Die Wellenlängendifferenz zwischen Online und Offline muss also einem Vielfachen des Resonatormoden-Abstandes entsprechen. Der Resonatormoden-Abstand wird durch das Variieren der Resonatorlänge mit Hilfe der drei Resonatorspiegel eingestellt. Zur Feinabstimmung der Resonatorlänge auf die Messwellenlängen ist einer der Resonatorspiegel an einem Piezoelement befestigt. Die Abstimmung erfolgt manuell, wobei als Regelsignal die spektrale Reinheit der erzeugten Strahlung dient (vgl. Abschn. 3.2.6). Zur Erhöhung der passiven Stabilität des Resonators sind die Spiegel in einem massiven Alublock integriert (s. Abb. in Anhang E.). Die wichtigsten Parameter dieses OPO sind in Tabelle 3.3 zusammengefasst.

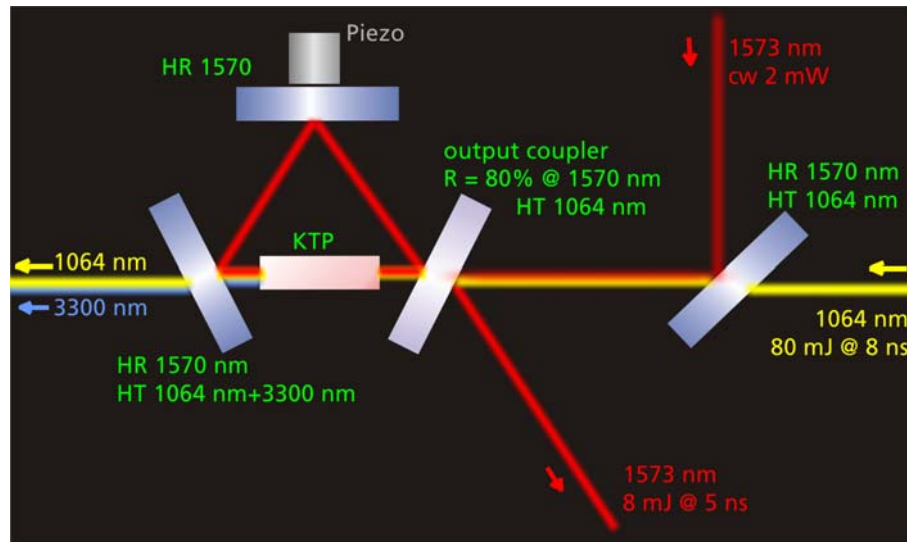


Abbildung 3.3: Schema des verwendeten OPOs. Links: Ringresonator aus drei Spiegeln mit KTP-Kristall (Spiegel-Eigenschaften: HR = hochreflektierend, HT = hohe Transmission, R = Reflexionsvermögen); von rechts oben: Seeder-Einkopplung

Cavity	ringförmig, einfach resonant für λ_{Signal}
Resonatorlänge (opt.)	92 mm
nicht-lineares Medium	KTP, (5 x 5 x 20) mm ³ , $\vartheta = 90^\circ$, $\phi = 0^\circ$
Phasenanpassung	nicht-kritisch, Typ II: o \rightarrow o+e
Pumpwellenlänge	1064 nm
Signalwellenlänge	1573 nm
Reflektivität outp.c.	80 %
Seeding	mit λ_{Signal} mittels DFB-LD

Tabelle 3.3: Technische Parameter des aufgebauten OPO

Wie schon in Abschnitt 1.4.2 erwähnt wurde, hängt die erzeugte Wellenlänge auch von der Kristalltemperatur ab. Im Betrieb kann sich durch Absorption der Laserstrahlung oder äußere Einflüsse die Temperatur ändern. Daher wurde ein beheizbarer Kristallhalter entwickelt. Mit einer Temperaturregelung (bestehend aus Heizwiderstand, PT100-Temperaturfühler und PID-Regler) ist es möglich, eine konstante Temperatur zu erreichen. Damit kann gewährleistet werden, dass das Verstärkungsprofil des OPO wellenlängenstabil ist.

Die messtechnisch erfassbaren Eigenschaften dieses OPO-Systems werden in Abschnitt 3.3.1 diskutiert.

3.2.3 Laserdioden für das Injection Seeding

In Abschnitt 2.3 wurde die Empfindlichkeit der Messmethode gegenüber Ungenauigkeiten der Messwellenlängen gezeigt. Die notwendigen spektralen Eigenschaften der Messstrah-

lung, also die Lage der Wellenlänge und die Schmalbandigkeit, werden durch das Injection Seeding erreicht. Daher ergeben sich hohe Anforderungen an die Seedlaser.

Laserdioden

Eine sorgfältige Auswahl der Seedlaser ist für das Erreichen der Anforderungen von großer Bedeutung. Es wird ein Laser mit einigen Milliwatt Ausgangsleistung benötigt, dessen Strahlung einmodig ist und eine spektrale Breite in der Größenordnung von 10 MHz hat. Für die hier beschriebene Anwendung ist es zudem notwendig, dass die Wellenlänge derart abgestimmt werden kann, dass die geforderten Messwellenlängen exakt erreicht und stabil gehalten werden können. Kleine durchstimmbare Dauerstrichlaser wie Diodenlaser eignen sich daher prinzipiell sehr gut. Verschiedene Typen werden für diesen Zweck daher bereits erfolgreich eingesetzt, wie es z.B. von Fix et al. [108] und Rahm et al. [109] beschrieben wird.

Es sind verschiedene Varianten kommerziell erhältlich, die auf unterschiedlichen Prinzipien beruhen und jeweils typische Eigenschaften haben. Im Folgenden soll daher zunächst eine Übersicht gegeben werden.

Allen Diodenlasern ist gemeinsam, dass ihr laseraktives Medium aus einer Halbleiterstruktur besteht (z.B. Indiumgalliumarsenid für Laseremission im Infrarot). Die Anordnung beruht auf dem Prinzip der PIN-Diode (eine undotierte, hier die laseraktive Schicht, die zwischen einer p- und einer n-dotierten Schicht eingebettet ist). Durch Anlegen einer elektrischen Spannung fließt ein Diodenstrom, wobei Elektron-Loch-Paare gebildet werden, also Elektronen vom Valenzband des Halbleiters in das Leitungsband gehoben werden und schließlich wie bei einer Leuchtdiode unter Lichtemission wieder rekombinieren. Mit höheren Strömen wächst die auftretende Ladungsträgerdichte, bis eine Inversion eintritt. Dadurch wird stimulierte Emission, also Lasertätigkeit, möglich [110].

Die hier beschriebenen Laserdioden-Typen sind so konstruiert, dass ein einmodiger Betrieb erreicht wird und dass sie durchstimmbare sind. Die Unterschiede zwischen den Typen ergeben sich aus der Gestaltung des Resonators und der wellenlängenselektiven Elemente. Bei „external-cavity Laserdioden“ (**ECDL**) liegt der Resonator außerhalb der Halbleiterstruktur. Zudem sorgt ein ebenfalls außerhalb liegendes optisches Gitter für die Wellenlängenselektion, also die Unterdrückung aller unerwünschten Resonatormoden, die im Verstärkungsbereich des Lasermediums liegen und sonst mit anschwingen würden. Dieses Gitter ist zudem drehbar angeordnet, so dass eine Durchstimmung der emittierten Wellenlänge erfolgen kann. Dieser Typ von Laserdioden zeichnet sich durch eine sehr schmale spektrale Breite (typischerweise < 1 MHz) und einen großen Durchstimmbereich (einige 10 nm) aus [111, 112]. Jedoch neigen sie je nach Ausführung mehr oder weniger stark zu ungewollten Modensprüngen und sind aufgrund ihrer Größe und der optomechanischen Komponenten im Betrieb empfindlicher gegen Vibrationen und Temperaturschwankungen als die folgenden, kompakteren Typen: distributed-feedback laserdiode (DFB-LD), distributed-bragg-reflector laserdiode (DBR-LD) und vertical-cavity surface-emitting lasers (VCSEL). Bei ihnen ist der gesamte Aufbau deutlich kleiner. So sind die wesentlichen Komponenten (laseraktive Zone, Resonator und wellenselektives Element) in der Halbleiterstruktur selbst eingebettet.

DFB- und **DBR-**Laserdioden sind sogenannte Kantenemitter, d.h. das Licht wird parallel zu den p-i-n-Halbleiterschichten nach außen geführt. Bei einem DFB-Laser befindet sich direkt in der laseraktiven Zone eine wellenlängenselektive Gitterstruktur (Bragg-Gitter), während diese bei DBR-Lasern außerhalb der laseraktiven Zone angeordnet ist. Das Charakteristikum der **VCSEL** besteht darin, dass der Resonator und damit die Emission senkrecht zu den Halbleiterschichten, also in Pumprichtung (Stromfluss durch die Diode) ausgerichtet ist. Daher werden sie als oberflächenemittierend bezeichnet. Der Schwellstrom für den Laserbetrieb ist hier relativ klein, die Herstellung etwas einfacher. Sie erreichen bisher allerdings noch keine genügend hohen Ausgangsleistungen [113].

Die Wellenlängen-Durchstimmung erfolgt bei diesen drei Typen sowohl durch eine Temperatur- als auch durch eine Stromänderung. Der durchstimbare Bereich ist dabei kleiner (einige nm) als bei EC-Diodenlasern, aber für viele Anwendungen ausreichend. Da die Gitterstrukturen im Halbleitermaterial fest integriert sind, kann eine Wellenlängenänderung, die hier ansetzt, nur durch die Änderung der Gitterkonstanten erreicht werden, was durch eine Temperaturänderung erfolgt. Dazu dient ein integriertes thermoelektrisches Element, über dessen Betriebsstrom die Temperatur der Halbleiterstruktur gezielt verändert bzw. stabil gehalten werden kann. Damit kann die Wellenlänge grob verstimmbar werden. Es kann der volle Durchstimbereich abgefahren werden, jedoch ist die Reaktion träge und es ist keine genügend präzise Feinabstimmung möglich. Variiert man dagegen den Laserdiodenstrom, bedeutet das neben einer Änderung der Ausgangsleistung eine Änderung der Ladungsdichte in den p- und n-Schichten, was eine Änderung des Brechungsindex des Halbleitermaterials zur Folge hat. Dadurch erfolgt eine Verschiebung der Verstärkungskurve der laseraktiven Zone, die zu einer Änderung der emittierten Wellenlänge führt. Die Reaktion hierbei ist sehr schnell (geeignet für Frequenz-Modulationen bis hin zu mehreren 10 GHz bei einem Modulationshub bis in den MHz-Bereich). Dieser Effekt wird zur Feinabstimmung der Wellenlänge ausgenutzt. [114]

System	Leistung	Durchstimmbarkeit	Praktikabilität	Preis	Verfügbarkeit
ECDL	+	++	o	o	+
DFB	+	+	++	+	+
DBR	+	+	++	+	o
VCSEL	-	+	++	+	o

Tabelle 3.4: Vergleich der verschiedenen Laserdioden-Typen; (+) die Eigenschaft ist ausreichend gut, (o) es ergeben sich Einschränkungen, (-) Ausschlusskriterium

Tabelle 3.4 zeigt einen direkten Vergleich der verschiedenen Typen, bewertet nach Kriterien, die für diese Arbeit maßgeblich sind. Die spektrale Breite ist bei allen Typen für die Anwendung als Seedlaser ausreichend gut. Die Praktikabilität bezieht sich auf die Abmessungen des Systems sowie auf die praktische Einsatzfähigkeit in einem Messsystem, das auch außerhalb der kontrollierten Bedingungen eines Labors (wie Temperatur und Vibrationsfreiheit) eingesetzt wird.

Zum gegenwärtigen Stand der Technik spielen DFB-Laserdioden in der Telekommunikation eine wichtige Rolle. Derartige Laserdioden wurden für die hier beschriebene An-

wendung gewählt. Ihre speziellen Eigenschaften werden im Folgenden erläutert.

DFB-Laserdioden aus der Telekommunikations-Technologie

Die technischen Entwicklungen auf dem Telekommunikationssektor der letzten Jahre sorgten dafür, dass DFB-Laserdioden für den nahen Infrarotbereich gut erhältlich, zudem technisch ausgereift und kostengünstig sind (das gilt auch für andere Komponenten für diesen speziellen Wellenlängenbereich, wie z.B. optische Fasern und Detektoren) [115].

Die eingesetzten fasergekoppelten DFB-Laserdioden (Fujitsu FLD5F15CA-S9090) liegen im L-Band der Telekommunikations-Wellenlängen [116] und haben laut Datenblatt die in Tabelle 3.5 gezeigten Eigenschaften. Es liegt dabei eine gute Übereinstimmung mit eigenen Messungen vor (s. Abschn. 3.3.1).

Wellenlängen-Bereich	1570,4 nm bis 1573.3 nm
Ausgangsleistung	max. 25 mW (cw)
spektrale Breite (FWHM)	3 - 10 MHz
Seitenmodenunterdrückung	33 dB
optischer Isolator	22 dB

Tabelle 3.5: *Technische Daten der eingesetzten DFB-Laserdioden*

Diese kommerziell erhältlichen DFB-Dioden besitzen in ihrem Gehäuse zusätzlich zur Laserdiode und dem thermoelektrischen Element eine integrierte Photodiode für Referenzmessungen der Ausgangsleistung und ein integriertes Fabry-Perot-Interferometer zur Kontrolle der emittierten Wellenlänge, wobei die Flanken der Interferometer-Moden an die Telekommunikations-Kanäle gemäß des ITU-Standards [116] angepasst sind. Ausschlaggebend für die Auswahl dieser Laserdioden als Seedlaser ist auch der integrierte optische Isolator gegen Rückreflexe, die beim Einsatz als OPO-Seedlaser, auch im Falle der hier verwendeten Ringcavity, nicht ganz zu vermeiden sind. Ein weiterer Faktor für die Wahl des 1,57 μm -Wellenlängenbereichs ist die Tatsache, dass die Verfügbarkeit dieser DFB-Laserdioden bei 1,6 μm eingeschränkt ist.

Seedlaser-Switch-Einheit

Ein Charakteristikum des aufgebauten Laborsystems ist die Verwendung *zweier* abwechselnd geschalteter DFB-Laserdioden als Seeder, je eine für Online und Offline. Obwohl bereits erfolgreich getestet wurde, für Online und Offline ein und dieselbe Laserdiode zu verwenden, indem mittels kurzzeitiger Stromänderungen zwischen den Wellenlängen umgeschaltet wird [117], wurde hier der Ansatz der Verwendung zweier Laserdioden weiterverfolgt, der z.B. bei Klingenberg et al. [118] beschrieben wird. Für die hohen Messgenauigkeits-Anforderungen ist es von Vorteil, dass beide Laserdioden getrennt voneinander auf die gewünschten Wellenlängen stabilisiert werden ohne die andernfalls nötigen extremen

Stromänderungen, die den Alterungsprozess der Laserdiode beschleunigen können und sehr präzise durchgeführt werden müssen.

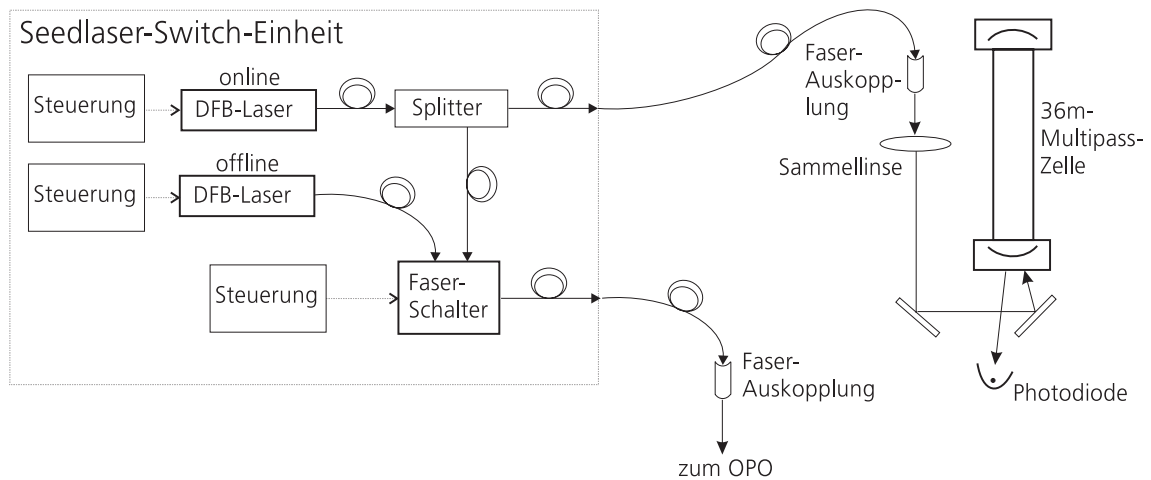


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung der Wellenlängenstabilisierung: links die Seedlaser-Switch-Einheit, rechts die 36 m-Multipass-Absorptionszelle

Ein zentrales Element des Laborsystems ist die entwickelte integrierte Einheit aus diesen zwei Laserdioden und einem optischen Schalter (Agiltron „CrystaLatch“), der synchron zu den Pump Laser-Impulsen abwechselnd die Online- und die Offline-Laserdiode auf den optischen Ausgang schaltet (s. Abb. 3.4). Der Schalter arbeitet ohne bewegliche Teile auf der Basis eines optischen Kristalls. Die Einheit hat darüber hinaus die nötige Steuerungselektronik für die Laserdioden und den Schalter integriert. Sie wird vom Steuerungs-/Datenerfassungs-Rechner per USB und RS232-Schnittstelle kontrolliert. Die Laserstrahlung wird intern vollständig mittels polarisationserhaltenden Singlemode-Fasern geführt. Die Polarisationserhaltung ist notwendig, da die Polarisationsrichtung für die Seedstrahlung durch die OPO-Konfiguration vorgegeben ist und dementsprechend eingestellt werden muss. Die Einheit besitzt zwei faseroptische Ausgänge: Der eine liefert kontinuierlich Online-Strahlung für die Wellenlängenstabilisierung, der andere die abwechselnd geschaltete Online- und Offline-Strahlung für den OPO. In den Abbildungen 3.2 und 3.3 ist zu sehen, dass die aus der Faser ausgekoppelte Seedstrahlung mittels Strahlteiler mit dem Pumpstrahl überlagert und in den OPO eingekoppelt wird.

Der fasergeführte Aufbau hat den Vorteil, dass die einzelnen Komponenten nicht starr in den Gesamtaufbau integriert werden mussten, sondern dass ein unabhängiges und flexibel einsetzbares Sub-Modul zur Verfügung steht. Alle Funktionen werden von speziell dafür entwickelten *LabView*-Programmen gesteuert. Der Aufbau, die Inbetriebnahme mit Programmierung und die Charakterisierung dieser Einheit ist ein wesentlicher Teil der hier beschriebenen Arbeit.

3.2.4 Online-Stabilisierung

Die geforderte hohe Wellenlängengenauigkeit der Online-Messwellenlänge setzt voraus, dass die Online-Seedlaserdiode ihrerseits diese Anforderung erfüllt. Dafür ist ein System nötig, das die absolute Wellenlänge präzise vorgibt und gleichzeitig ein Signal zur Wellenlängenstabilisierung bereitstellt. Das integrierte Fabry-Perot-Interferometer der DFB-Laserdioden ist dafür prinzipiell vorgesehen, allerdings nur mit einer Genauigkeit von

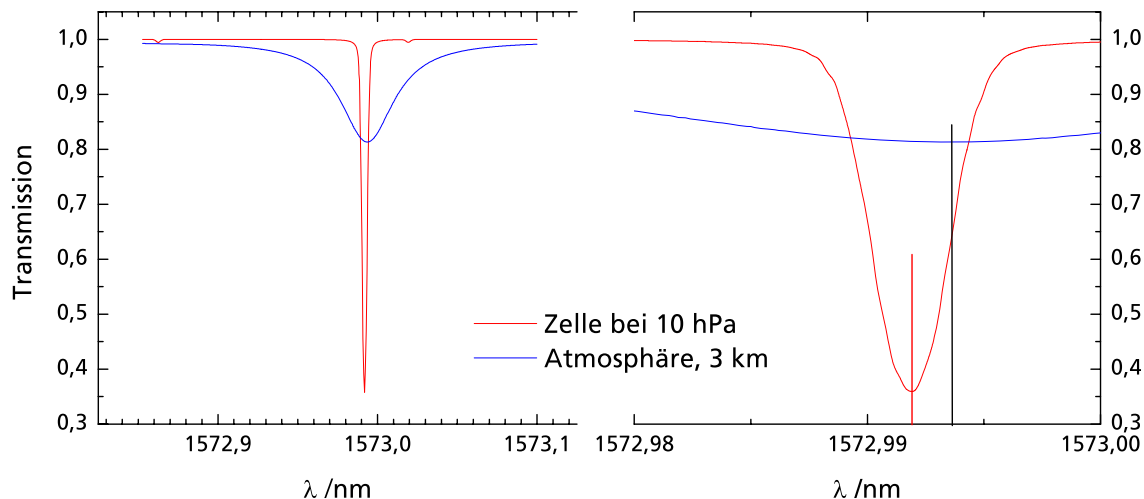


Abbildung 3.5: Transmissionen der gleichen molekularen CO_2 -Absorptionslinie einmal unter den Bedingungen der 36 m-Multipasszelle und einmal in der Atmosphäre in Abhängigkeit von der Wellenlänge (jeweils gerechnet); zu erkennen sind die Druckverbreiterung und der Druckshift; rechts ist eine starke Vergrößerung bzgl. der Wellenlängenskala zu sehen

einigen GHz, was zwar für die vorgesehene Anwendung in der Telekommunikation ausreicht, aber für die hier beschriebene Anwendung um zwei Größenordnungen zu ungenau ist. Bei konstanter Raumtemperatur treten bei diesen Laserdioden ohne Stabilisierung nach einer Aufwärmphase Wellenlängen-Drifts von mindestens 100 MHz auf.

Eine sehr präzise Einstellung der absoluten Wellenlänge und eine Stabilisierung wird mit Hilfe einer Multipass-Absorptionszelle erreicht. Wird diese mit CO_2 befüllt, dienen die Absorptionslinien als absolute Wellenlängen-Referenzen und es steht ein Regelsignal für die Stabilisierung zur Verfügung. Die erfolgreiche Verwendung dieser Methode zur Stabilisierung auf eine Wasserdampf-Absorptionslinie wurde von Poberaj et al. [119] gezeigt.

Eine Aufgabe dieser Arbeit war es, eine geeignete Konfiguration für die Stabilisierung des hier verwendeten Online-DFB-Lasers zu finden. Befüllt man eine Multipasszelle mit reinem CO_2 und liegt in der Zelle ein im Vergleich zur Atmosphäre sehr niedriger Druck vor, sind die Linien zum einen sehr schmal und zum anderen sind die atmosphärischen Linien entsprechend druckverschoben. Beide Effekte werden für die Stabilisierung genutzt. Stimmt man die Absorptionslänge der Zelle, die entsprechende molekulare Linienstärke der ausgesuchten Absorptionslinie und den Druck in der Zelle gut aufeinander ab, erhält man eine Konfiguration, die ein leistungsfähiges Mittel zur Stabilisierung der Online-Wellenlänge darstellt.

Der gewählte Aufbau ist in Abbildung 3.4 dargestellt. Die für die Wellenlängenstabilisierung abgezwigte Online-Seed-Strahlung wird in die mit reinem CO_2 (10 hPa Druck) gefüllte Multipass-Absorptionszelle mit einer optischen Weglänge von 36 m eingekoppelt (Aerodyne Research, Inc, Modell: AMAC-36). Es handelt sich um eine modifizierte Herriott-Zelle [120]. Die durch die Zelle transmittierte Strahlung wird von einer Photodiode (InGaAs-PIN Hamamatsu G6854-01) detektiert. Die Signale werden von einer Analog-

Digital-Wandlerkarte (National Instruments PXI-6221) erfasst und vom Steuerungs-/Datenerfassungs-Rechner verarbeitet. Ein mit *LabView* realisierter PID-Regler [121] stabilisiert über die Variation des Laserdiodenstromes die Ausgangswellenlänge.

In Abbildung 3.5 sind die resultierenden Absorptionslinien dargestellt. In der Zelle erscheint die Absorptionslinie sehr schmal mit einer vollen Halbwertsbreite von 500 MHz (ca. 4 pm) und 36 % Transmission im Minimum. Unter atmosphärischen Bedingungen ist diese Linie zum einen druckverbreitert und zum anderen so weit druckverschoben, dass das Maximum im Bereich der Linienflanke der Zellen-Referenzlinie liegt. Da diese Flanke sehr steil ist, konnte eine präzise arbeitende klassische Flankenregelung aufgebaut werden und damit eine Stabilisierung auf das Linienmaximum der atmosphärischen Linie erfolgen. Die Besonderheit dieser Methode ist also, dass durch die Existenz des Druckshifts eine Regelung auf das Linienmaximum mittels einer Flankenregelung erreicht werden kann. Da es sich in der Zelle und in der Atmosphäre jeweils um die gleiche molekulare Absorptionslinie von CO₂ handelt, ist die Kenntnis des absoluten Wertes ihrer Wellenlänge nicht nötig. Es genügt, den Wert für den Druckshift der gewählten Linie zu kennen. Dieser wurde für die hier verwendete Linie der Literatur entnommen [48].

Die mit dieser Methode erreichte Wellenlängen-Stabilität wird in Abschnitt 3.3.1 analysiert.

3.2.5 Offline-Stabilisierung

Den Simulationsrechnungen zufolge (s. Abschn. 2.2) sind die Anforderungen an die Offline-Wellenlängen-Genauigkeit mit etwa 2 GHz vergleichsweise gering. Es wird daher angenommen, dass eine Stabilisierung anhand des internen Fabry-Perot-Interferometers der DFB-Dioden ausreicht [122, 117]. Die Genauigkeit dieser Methode ist geringer als die zuvor behandelte, da die Flanken des internen FPI wesentlich flacher verlaufen als die der CO₂-Linie in der Multipasszelle. Zudem ist es nicht temperaturstabilisiert, was zu Drifts der Flanken gegenüber der absoluten Wellenlänge führt. Die Güte der Methode wird in Abschnitt 3.3.1 betrachtet.

3.2.6 Nachweis der spektralen Eigenschaften

Zur Vermeidung systematischer Fehler aufgrund mangelhafter spektraler Qualität der eingesetzten Laserstrahlungen wird eine strenge Qualitätskontrolle benötigt. Im Folgenden werden die hierfür verwendeten Methoden erläutert. Jede dieser Methoden liefert spezielle Informationen, die durch die anderen jeweils schlechter oder gar nicht zugänglich sind.

210 m-Multipasszelle

In Abschnitt 2.3.2 wurde die Fehlerwirksamkeit von spektralen Unsicherheiten der erzeugten Messstrahlung betrachtet, insbesondere die Wirkung von nicht vollständig unterdrückten OPO-Seitenmoden. Daher ist es von zentraler Bedeutung, ein Messsystem zur Verfügung zu haben, das die spektrale Reinheit jedes einzelnen erzeugten Messimpulses simultan ermittelt. Dafür ist ein äußerst schmalbandiger Filter notwendig, der

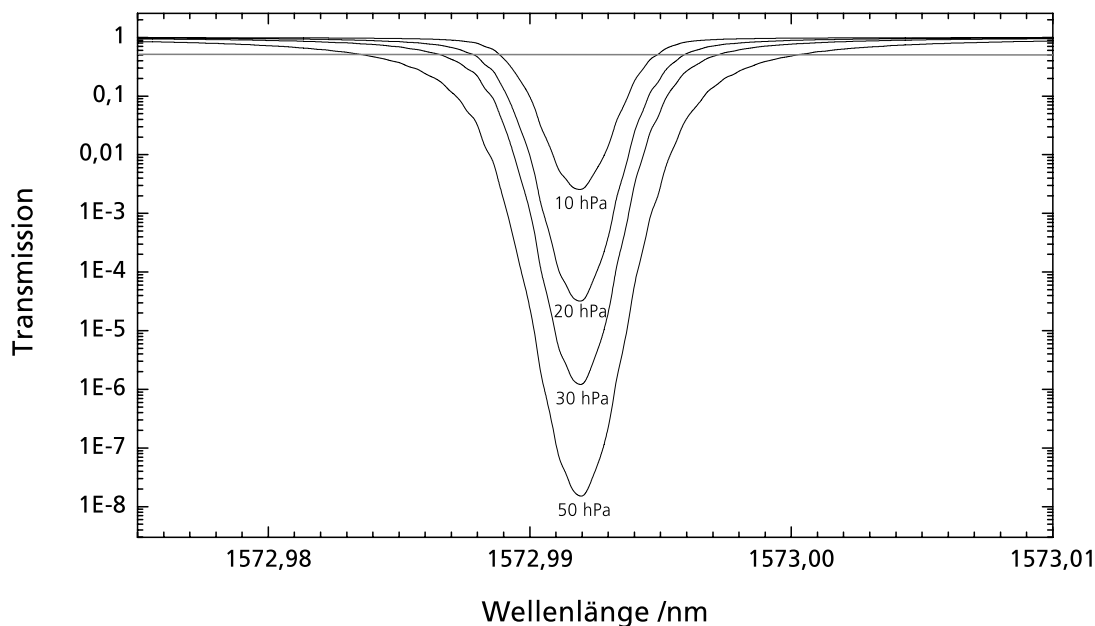


Abbildung 3.6: Darstellung eines Transmissions-Spektrums der 210 m-Multipass-Zelle (Voigt-Profile, gerechnet) für reines CO₂ bei verschiedenen Drücken bei 1573 nm. Es ergeben sich die vollen Halbwertsbreiten: 0,7 GHz (10 hPa), 0,9 GHz (20 hPa), 1,2 GHz (30 hPa) und 1,9 GHz (50 hPa)

eine sehr geringe Transmission aufweist und absolut wellenlängenstabil ist. Multipass-Absorptionszellen können diese Anforderungen sehr gut erfüllen, wie Poberaj et al. [119] bereits zeigen konnten.

Es muss eine Abstimmung zwischen der Absorptionslänge der Zelle, der Art und dem Druck des absorbierenden Gases erfolgen. Erreicht werden muss, dass die Absorptionslinien bei den passenden Wellenlängen liegen, dass sie möglichst schmal und dass sie für eine geringe Transmission gesättigt vorliegen. Die Wellenlängenstabilität wird dadurch gewährleistet, dass die Absorptionslinie auf einem bestimmten Energie-Übergang der Moleküle des jeweiligen Gases beruht, es sich bei der Wellenlänge also um eine Stoffeigenschaft handelt, die durch äußere Einflüsse kaum verändert wird (s.a. Abschn. 1.2.1 und 1.2.2).

Im hier beschriebenen Aufbau wurde eine Multipasszelle mit 210 m optischer Weglänge (Aerodyne Research, Inc, Modell: AMAC-200) verwendet. Es handelt sich wie die 36 m-Zelle für die Online-Stabilisierung um eine modifizierte Herriott-Zelle [120]. Wird sie mit reinem CO₂ befüllt, ergeben sich die in Abbildung 3.6 gezeigten Filterkurven. Es wurde ein Druck von 35 hPa gewählt, da so eine sehr gute Filterwirkung bei gleichzeitiger Schmalheit der Linie erreicht wird. Der aufgebaute OPO zeigt einen Modenabstand von 3,25 GHz (ca. 26 pm, Einfachumlauf) bzw. 1,625 GHz (ca. 13 pm, Doppelumlauf) (s.a. Abschn. 3.3.1). Anschwingende Seitenmoden können also problemlos detektiert werden (s.a. Abb. 2.10). Da als Befüllung der Zelle Kohlendioxid verwendet wird, steht somit für jede mögliche Absorptionslinie, die für die Messung gewählt wird, ein leistungsfähiger Filter zur Verfügung, mit dem die spektrale Reinheit der Messimpulse zuverlässig bestimmt werden kann.

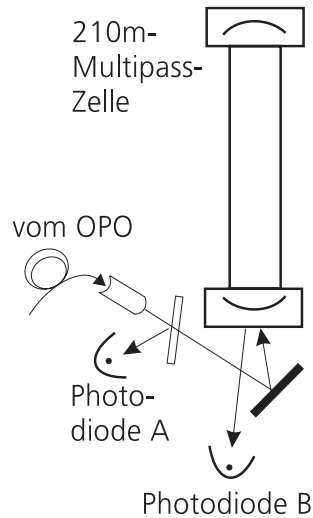


Abbildung 3.7: *Optischer Aufbau für die Bestimmung der spektralen Reinheit der erzeugten Online-Messtrahlung; Photodiode A liefert die Referenzwerte L^{ref} und B die durch die Zelle transmittierten Leistungen L*

In Abbildung 3.7 ist die aufgebaute Messanordnung zu sehen. Mit einem Strahlteiler wird ein kleiner Teil der vom OPO erzeugten Strahlung in eine Faser eingekoppelt (Abb. 3.2) und vor der Multipasszelle wieder ausgekoppelt. Ein weiterer Strahlteiler lenkt einen Teil der Strahlung direkt auf eine Referenz-Photodiode, der Rest durchläuft die 210 m der Zelle bevor er auf eine weitere Photodiode (Hamamatsu G6854-01 und G8370-03) zur Messung der Zellen-Transmission trifft.

Die spektrale Reinheit p berechnet sich gemäß Gleichung 2.15 aus den Messwerten L der beiden Photodioden:

$$p = 1 - \left(\frac{L_{on} \cdot L_{off}^{ref}}{L_{on}^{ref} \cdot L_{off}} \right) \quad (3.1)$$

Die Photodioden-Signale werden mit einem Oszilloskop (Tektronix, 2-Kanal, 300 MHz) erfasst. Die Berechnung von p erfolgte manuell. Für einen zukünftigen Ausbau des Systems ist eine automatische Erfassung, Berechnung und Speicherung von p möglich und sinnvoll, da so parallel zu den Messdaten Informationen über die Qualität der einzelnen Messimpulse vorliegen. Eine automatisch erfasste spektrale Reinheit kann beispielsweise auch als Regelsignal für eine automatische Cavity-Kontrolle dienen, wie es in [119] beschrieben wird.

In dieser Arbeit wurde das Signal der Multipasszelle als Echtzeit-Monitor für die Qualität der Ausgangsstrahlung verwendet, insbesondere bei der Justage des Systems. Im Messbetrieb war es für die manuelle Abstimmung und Nachregelung des OPO-Resonators durch das Piezoelement unbedingt erforderlich.

Spektrum-Analysator (OSA)

Für eine spektral aufgelöste Messung der Seedlaser- sowie der OPO-Strahlung wurde ein optischer Spektrum-Analysator (ANDO AQ6317B) verwendet. Damit konnte die spektra-

le Breite des freilaufenden OPO und die Seitenmodenunterdrückung der DFB-Laserdioden bestimmt werden. Er hat eine maximale Auflösung von 11 pm (ca. 1,3 GHz) und kann beliebige Bereiche zwischen 600 nm und 1750 nm unter Angabe der absoluten Wellenlängen vermessen. Sein Dynamikbereich ist mit 70 dB extrem hoch und damit in diesem Punkt den anderen beschriebenen Messmethoden weit überlegen. Das Gerät wurde auch während der CO₂-Messungen zur Kontrolle der erzeugten Wellenlängen eingesetzt. Es können damit jedoch keine einzelnen Messimpulse betrachtet werden, da jeder Messpunkt des aufgezeichneten Spektrums einen bzw. bei Signalmittelung mehrere Laserimpulse benötigt. Zudem ist die spektrale Auflösung vergleichsweise gering. Für spezielle hochauflösende Messungen wurden die im Folgenden beschriebenen Methoden verwendet.

Scanning Fabry-Perot-Interferometer

Hochaufgelöste Informationen über die spektrale Breite der Seedlaser und ihre Wellenlängenstabilität wurden mit Hilfe eines „scanning Fabry-Perot-Interferometers“ (FPI) gewonnen [123]. Abbildung 3.2 zeigt die Integration in den Laboraufbau.

Der freie Spektralbereich des verwendeten Geräts (Burleigh) beträgt 2 GHz, was bei einer Finesse von 350 ein Auflösungsvermögen von 6 MHz ergibt. Das reicht aus, um die geforderten Eigenschaften nachzuweisen. Außerdem können seine Signale bei abgeschaltetem Piezo-Scanner während der Durchstimmung der Laserdioden-Wellenlänge als präzise Wellenlängen-Differenz-Marken verwendet werden, wie es beispielsweise in Abbildung 3.20 zu sehen ist.

Da das Gerät selbst nicht temperaturstabilisiert ist und daher Drifts auftreten, haben nur im Sekundenbereich beobachtete Wellenlängen-Schwankungen Aussagekraft. Die Wellenlängenstabilität der DFB-Laser auf längeren Zeitskalen kann besser mit Hilfe der 36 m-Multipasszelle betrachtet werden (s. Abschn. 3.3.1).

Heterodyn-Messung

Die Ausgangswellenlänge eines geseedeten OPO stimmt nicht zwangsläufig exakt mit der Wellenlänge des Seedlasers überein. Effekte wie z.B. das „cavity pulling“ [124] können zu Abweichungen führen. Hierbei ist der OPO-Resonator nicht präzise auf die Seedwellenlänge abgestimmt und der Resonator „zieht“ die erzeugte Wellenlänge bei aktivem Seeding in Richtung der Resonator-Resonanz. Größere Abweichungen würden zwar bei der Messung der spektralen Reinheit detektiert werden oder sich durch ein Absinken der Ausgangsleistung bemerkbar machen. Die geforderte Genauigkeit von unter 100 MHz ist so jedoch nicht verifizierbar.

Derartige Abweichungen können durch die Messung der Schwebungsfrequenz bei Überlagerung der OPO- und Seedlaser-Strahlen (Heterodyn-Methode) [124] erfasst werden. Zudem ist es möglich, die spektrale Breite der Strahlung zu bestimmen. In Abbildung 3.8 ist der verwendete Aufbau schematisch dargestellt. Ein kleiner Teil der OPO-Strahlung wird in eine optische Faser eingekoppelt. Ein Faser-„Combiner“ koppelt diese Strahlung mit einem Teil der Strahlung des Seedlasers in eine gemeinsame Faser, in der beide interferieren. Es handelt sich jeweils um polarisationserhaltende Singlemode-Fasern. Die

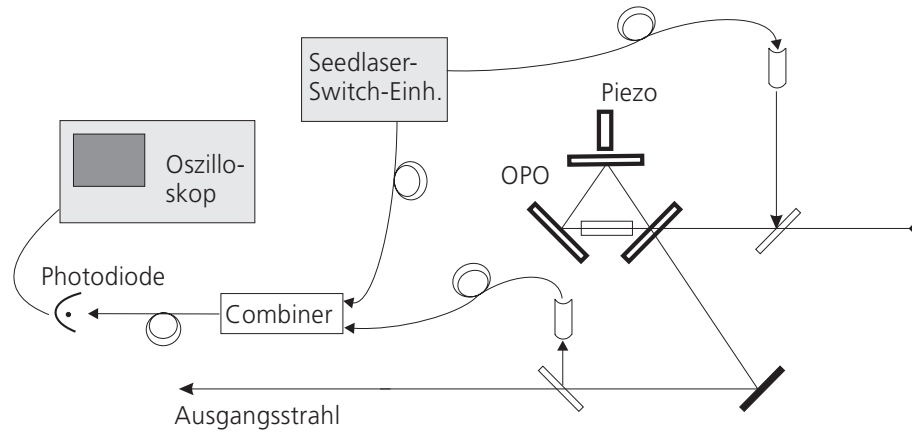


Abbildung 3.8: Schematische Darstellung des verwendeten Aufbaus für die Heterodynmessung

resultierende Strahlung wird von einer 2 GHz-InGaAs-PIN-Diode erfasst und das Signal von einem schnellen Oszilloskop (Tektronix, 1 GHz) gemessen. Besteht zwischen den beiden Strahlungen eine Frequenz-Differenz, tritt eine Schwebung auf, also eine periodische Intensitäts-Schwankung mit genau der Differenzfrequenz, die von der Photodiode und dem Oszilloskop erfasst wird.

Diese Methode wurde hier ausschließlich in separaten Experimenten zur Demonstration und zum Test eingesetzt und kam nicht während des Messbetriebs zum Einsatz. Die Ergebnisse sind in Abschnitt 3.3.1 gezeigt.

3.2.7 Detektionsoptik

Die Detektion erfolgt nach dem Prinzip des Direktempfängs, d.h. die Intensität der vom Target zurück gestreuten Laserstrahlung wird direkt mit einem Detektor gemessen. Die Detektionsoptik hat die Aufgabe, die Strahlung auf den Detektor zu fokussieren. Dabei sollte der gesamte Querschnitt des Target-Reflexes erfasst werden, um keine Energie zu verlieren und um eventuelle Pointing-Instabilitäten, also Schwankungen der Strahlrichtung, tolerieren zu können. Zudem erfordert das IPDA-Messprinzip eine Leistungsmessung der ausgesandten Impulse. Um von vornherein Fehler zu vermeiden, die auf eventuellen Unterschieden in der Charakteristik zweier Detektoren beruhen (selbst wenn sie baugleich sind), wurde eine Konfiguration gewählt, bei der die Leistungs- und die Target-Reflex-Messung mit demselben Detektor durchgeführt wird. Die Signale werden durch den zeitlichen Versatz unterschieden. Optimalerweise sollte der für die Leistungsmessung abgezwigte Teil des ausgehenden Laserstrahls auf die gleiche Weise auf den Detektor abgebildet werden wie der durch das Teleskop erfasste Target-Reflex. Das kann durch die Unterschiede, die zwischen dem Nah- und Fernfeld einer Laserstrahlung bestehen, nie vollständig erreicht werden. Eine möglichst verlustarme und eine von der räumlichen Strahlqualität möglichst unabhängige Detektion des Laserlichts zu verwirklichen, war eine der zentralen Aufgaben dieser Arbeit.

Die vorliegende Konfiguration der Detektionsoptik ist das Ergebnis eines aufwendigen Optimierungsprozesses. Das Ergebnis ist der in Abbildung 3.9 dargestellte Aufbau.

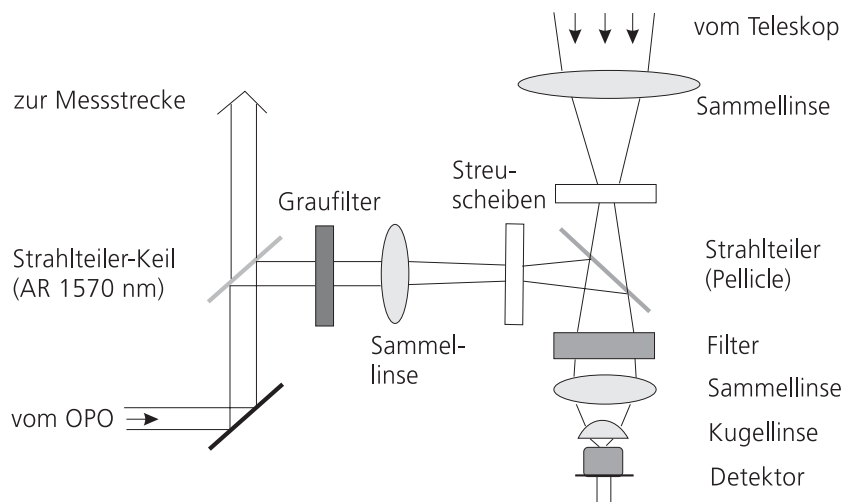


Abbildung 3.9: *Schema der Detektionsoptik im Detail: Für die Leistungs-Referenzmessung wird ein Teil des ausgehenden Strahls abgezweigt; ein Strahlteiler führt den Referenz-Strahl mit dem vom Teleskop eingesammelten Licht zusammen*

Die Detektionsoptik ist folgendermaßen konzipiert: Die vom OPO erzeugten Ausgangsimpulse werden in Richtung der Messstrecke aus dem Labor ins Freie umgelenkt, wobei ein antireflexbeschichteter, keilförmiger Strahlteiler einen kleinen Teil der Strahlung abzweigt und zur Leistungsmessung in den Strahlengang zum Detektor lenkt. Das vom Target zurückgestreute Licht wird von einem Spiegelteleskop eingesammelt und zu einer fokussierenden Optik geführt. Als Teleskope kamen ein Schmidt-Cassegrain-Teleskop (Celestron 8") mit 20 cm Öffnungsdurchmesser und 2 m Brennweite, sowie ein Newton-Teleskop (Vixen R150S) mit 15 cm Durchmesser und 0,75 m Brennweite zum Einsatz. Zur Homogenisierung des einfallenden Lichts mussten sowohl im Zweig für die Leistungsmessung als auch im Teleskop-Zweig Streuscheiben eingesetzt werden. Diese Maßnahme erwies sich als nötig, da eine direkte Abbildung auf den Detektor zu erheblichen Schwankungen des Messsignals führte. Bei ersten Testmessungen zeigten sich Instabilitäten, die variablen Abweichungen im CO_2 -Mischungsverhältnis von 11 % (1σ) bei einem Bias von 30 % entsprachen. Als mögliche Ursache kommt eine unzureichende räumliche Strahlqualität der Messstrahlung in Frage (s. a. Abschn. 5.1.3). Im Zweig für die Leistungsmessung schwächt ein Graufilter zudem den Strahl stark ab. Das *field of view*, festgelegt durch das Teleskop und die fokussierende Optik, liegt bei etwa 4 mrad.

Der in der Abbildung gezeigte Strahlengang wurde mit Hilfe der Software *ZEMAX* (Focus Software, Inc.) optimiert [125]. Eine Abbildung ist in Anhang E. zu sehen.

Detektor

Als Detektor wurde eine PIN-Diode aus Indium-Gallium-Arsenid mit 1 mm Durchmesser der photoaktiven Fläche gewählt (Hamamatsu G8605). Es wurden zudem Tests mit einer APD durchgeführt (Perkin Elmer C30662E), mit der eine deutlich höhere Empfindlichkeit zu erreichen ist. Der vergleichsweise kleine Durchmesser ihrer photoaktiven Fläche von 0,2 mm erwies sich jedoch im Zusammenhang mit der anspruchsvollen Aufgabe, eine

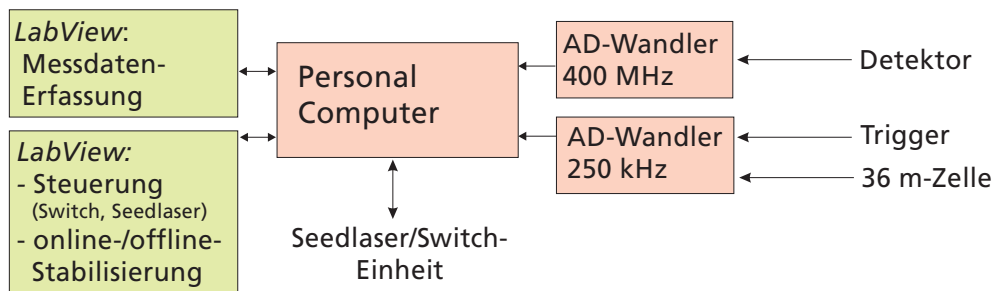


Abbildung 3.10: Übersicht über die Struktur der Steuerung/Datenerfassung: Hardware (rot) und Software (grün)

optimale Abbildung des Target-Reflexes und der Leistungsmessung zu erreichen, zunächst als ungeeignet. Im Anhang wird der Vorteil einer APD gegenüber einer PIN anhand einer simulierten Beispiel-Situation gezeigt (s. Anhang D.2).

Ein Kantenfilter vor dem Detektor filtert das Pumplaser-Streulicht (1064 nm), das im Labor vorliegt, sowie einen großen Teil des Tageslicht-Hintergrundes heraus. Zusammen mit der spektralen Empfindlichkeit des Detektors ergibt sich daraus ein Detektionsbereich von 1450 nm bis 1650 nm.

Zum gegenwärtigen Zeitpunkt erreichen Detektoren, die für den Wellenlängenbereich um $2 \mu\text{m}$ (und größer) ausgelegt sind, nicht die hohen Empfindlichkeiten der Modelle für die kürzerwelligen Bereiche [126], die vor allem für die Telekommunikation entwickelt wurden. Dieser Umstand war ein entscheidendes Kriterium, den Messbereich um $1,6 \mu\text{m}$ dem Bereich um $2 \mu\text{m}$ vorzuziehen.

3.2.8 Datenerfassung

Die Steuerung/Datenerfassung hat im Messbetrieb verschiedene Aufgaben zu erfüllen. Die wichtigste ist, die vom Detektor ausgegebenen Messsignale zu erfassen. Darüberhinaus muss eine Ansteuerung der Laserdioden und des optischen Schalters erfolgen sowie die Stabilisierung der Laserdioden-Wellenlängen.

Hardware

Für die Erfassung der Messsignale wurde nach umfangreichen Tests verschiedener Geräte die Analog-Digital-Wandlerkarte DC 440 von Acqiris gewählt. Sie hat mit 400 MHz eine sehr hohe Samplingrate, also ein großes zeitliches Auflösungsvermögen, was eine vollständige Erfassung des Messsignal-Verlaufs ermöglicht. Ihr Auflösungsvermögen bezüglich der Signalamplitude beträgt 12-bit. Geringes Rauschen und eine originalgetreue Wiedergabe der hier vorliegenden kurzen Eingangsimpulse sind weitere wichtige Eigenschaften des Geräts.

Des Weiteren wird für die Erfassung des Signals der 36 m-Multipasszelle sowie des Triggersignals (für das Umschalten zwischen den Online- und Offline-Seedlasern, erzeugt vom Pumplaser) die Analog-Digital-Wandlerkarte PXI-6221 von National Instruments verwendet. Sie hat eine Samplingrate von 250 kHz und eine 16-bit-Auflösung.

Als Rechner wird ein Compact-PCI Personal Computer (Adlink 6840) unter Windows XP (Microsoft) eingesetzt. Über seine seriellen Schnittstellen wird die Seedlaser-Switch-Einheit direkt angesteuert.

Software

Mit *LabView* („Laboratory Virtual Instrument Engineering Workbench“, National Instruments Corp.) wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit ein Programm entwickelt, das aus den vom Digitizer erfassten Rohsignalen die vier für die Auswertung (s. Abschn. 4.2.4) benötigten Messwerte ermittelt und speichert: die Target-Reflexe P_{on} und P_{off} sowie die entsprechenden Leistungsreferenz-Messungen P_{on}^{ref} und P_{off}^{ref} .

Die jeweilige Leistung P wird aus dem empfangenen, digitalisierten Impuls berechnet, indem der Mittelwert aus drei Messpunkten, das Impulsmaximum und je ein Wert davor und danach, gebildet wird. Dadurch wird das Digitizer-Rauschen etwas vermindert. Des Weiteren wird der Signal-Bias korrigiert, der im Wesentlichen durch den Tageslicht-Hintergrund erzeugt wird.

Weitere *LabView*-Programme wurden realisiert, um die DFB-Laser sowie den optischen Schalter (Switch) zu steuern und um die Online- bzw. Offline-Stabilisierung durchzuführen.

3.3 Ergebnisse

In Abschnitt 2.4.3 wurden aus den durchgeführten Simulationen Anforderungen an das Messsystem abgeleitet. Um feststellen zu können, inwieweit das aufgebaute System diese Anforderungen erfüllt, wurden die Parameter der einzelnen Komponenten detailliert untersucht und charakterisiert. Aus den ermittelten Eigenschaften werden schließlich resultierende Messfehler abgeschätzt. In Kapitel 5 werden die Resultate mit den Anforderungen verglichen.

3.3.1 Eigenschaften des Systems

DFB-Laserdioden

Bei der Untersuchung der spektralen Eigenschaften der Laserstrahlung beider DFB-Seedlaser wurde das scanning Fabry-Perot-Interferometer (FPI) und der Spektrum-Analysator eingesetzt (OSA). Folgende für die Anwendung wichtige Parameter wurden quantifiziert:

- spektrale Breite
- Stabilität der Wellenlänge (Jitter)
- Seitenmodenunterdrückung

Die Messung mit dem *FPI* ergab spektrale Breiten von jeweils 9 MHz (s. Abb. 3.11), wobei hier eine Faltung aus der 6 MHz breiten Gerätefunktion des FPI mit der Laserlinienbreite vorliegt (FWHM). Das zeitliche Verhalten des FPI-Signals zeigte Schwankungen

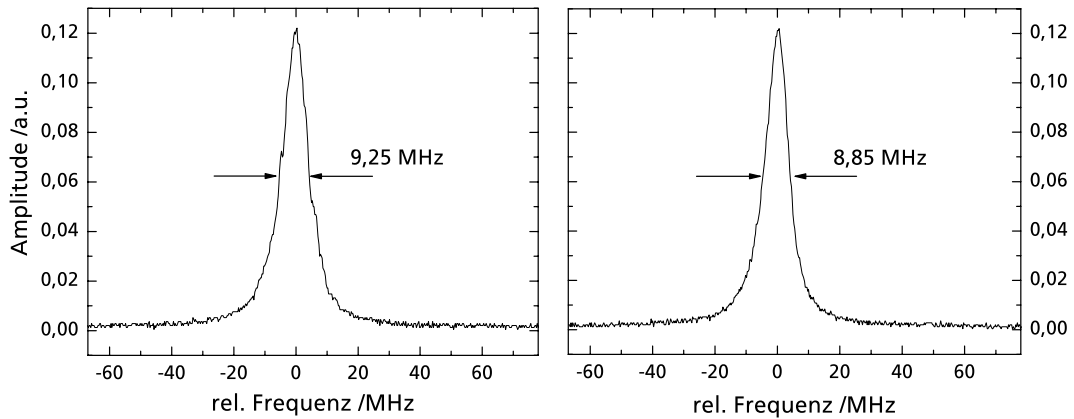


Abbildung 3.11: Messung der Linienbreite (FWHM) der DFB-Laserdioden mittels scanning Fabry-Perot-Interferometer: links Online, rechts Offline

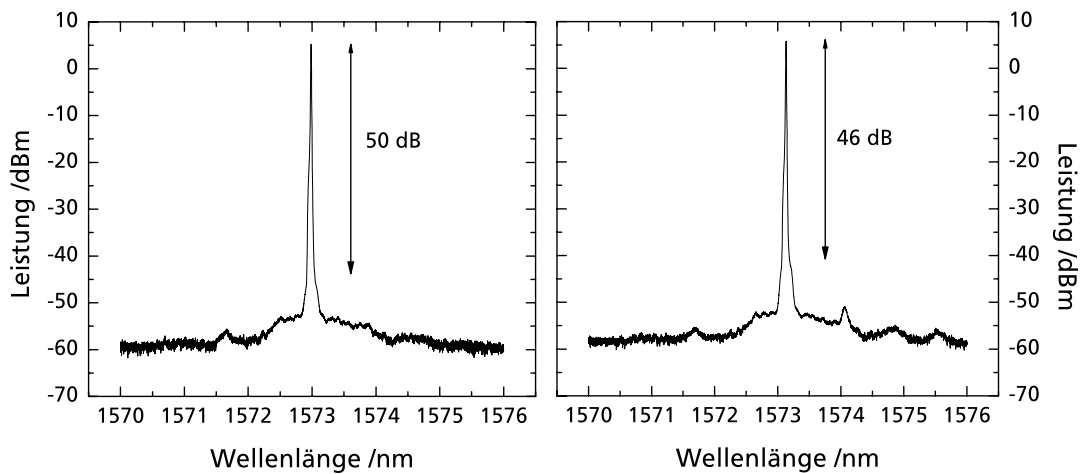


Abbildung 3.12: Spektrale Verteilung der emittierten Strahlung der Online- (links) und Offline-Seedlaserdiode (rechts)

der Wellenlänge um maximal ± 10 MHz im Sekundenbereich (Jitter). Zudem waren wiederkehrende, jeweils kurzzeitig auftretende spektrale Instabilitäten zu beobachten, die sich in leichten Verbreiterungen der Linien äußerten. Bei der Online-Laserdiode zeigte das *FPI* hierbei eine Breite von 15 MHz, bei der Offline-Laserdiode 35 MHz. Die Anforderungen werden damit dennoch gut erfüllt.

Der *OSA* lieferte die in Abbildung 3.12 gezeigten Messungen. Man erkennt, dass die Seitenmodenunterdrückung über 45 dB beträgt. Damit wird die Spezifikation des Herstellers um über 10 dB übertroffen.

Die in den OPO eingekoppelte Seedlaser-Leistung liegt bei ca. 5 mW. Das ist für ein erfolgreiches Seeding ausreichend [58]. Die Messungen zeigen, dass sich die DFB-Laserdioden als Seedlaser für das OPO-System eignen.

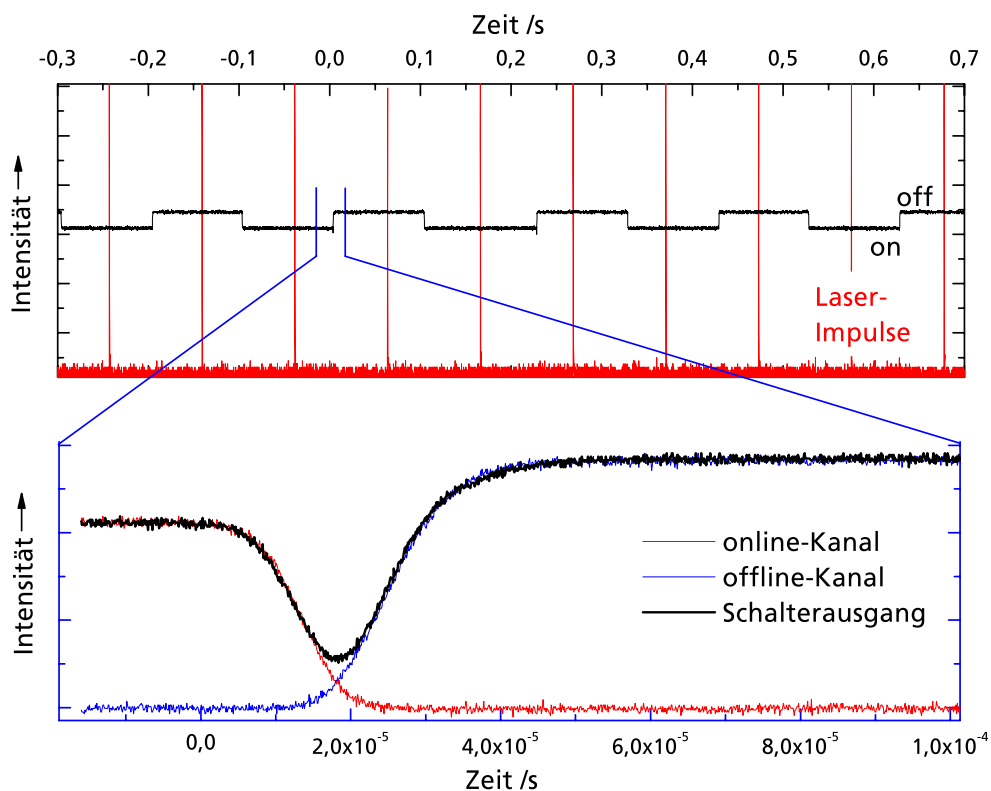


Abbildung 3.13: Messung der Umschaltcharakteristik des optischen Schalters; oben: Umschaltung zwischen Online- und Offline-Seedlasern synchron zu den Laserimpulsen; unten: zeitlich hochaufgelöste Darstellung des Umschaltvorgangs

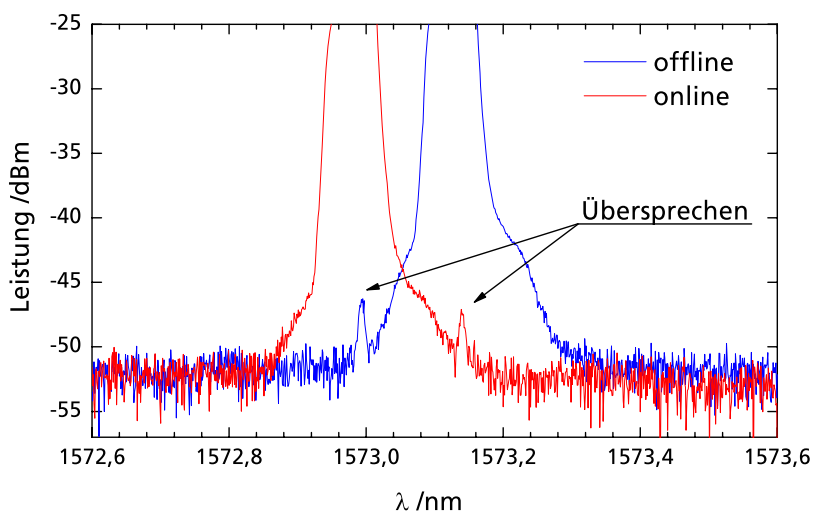


Abbildung 3.14: Messung des Übersprechens der Online- und Offline-Kanäle des optischen Schalters

Optischer Schalter

Der faseroptische Schalter hat zwei Anforderungen zu erfüllen: Einerseits muss das Übersprechen der Kanäle ausreichend gering sein, d.h. wenn ein Online-Impuls erzeugt werden soll, darf keine Offline-Seedstrahlung in den OPO gelangen und umgekehrt. Das ist für das Seeding von Bedeutung, da hier auch sehr kleine Intensitäten ausreichen können, um auch die jeweils andere Wellenlänge anschwingen zu lassen. Zum anderen muss der Schalter schnell genug sein, damit für jeden Impuls ein eindeutiger Schalterzustand vorliegt.

In Abbildung 3.13 ist der zeitliche Verlauf des Schaltvorganges dargestellt. Oben sieht man in schwarz die Seedlaser, wobei hier Offline das stärkere Signal hat. In rot sind die entsprechenden Laserimpulse dargestellt. Unten wird der Umschaltvorgang von Online zu Offline zeitlich hochaufgelöst gezeigt. Man erkennt an den Kurven, dass der Umschaltvorgang nach spätestens $60 \mu\text{s}$ vollständig abgeschlossen ist. Das erlaubt einen Einsatz bei Laserimpuls-Raten bis zu mehreren Kilohertz. Für den hier beschriebenen 10 Hz-Betrieb ist das bei Weitem ausreichend. Des Weiteren besteht die Option, die Seedlaser-Switch-Einheit in einem zukünftigen System mit höherer Impulsrate einzusetzen.

Das Übersprechen ist in Abbildung 3.14 zu sehen. In beiden Schalterzuständen ist der jeweils andere Kanal deutlich erkennbar. Dieser ist jedoch jeweils mit mehr als 50 dB Differenz ausreichend unterdrückt. Damit sind beide Anforderungen sehr gut erfüllt.

Charakterisierung des OPO

Das aufgebaute OPO-System erzeugt Laserimpulse mit einer Dauer von 5 ns im geforderten Wellenlängenbereich von $1,57 \mu\text{m}$. Durch das Injection Seeding können zwei schmalbandige Wellenlängen innerhalb des Verstärkungsprofils des OPO erzeugt werden, die als Online- und Offline-Wellenlängen fungieren, wie in Abbildung 3.15 zu sehen ist.

Die Halbwertsbreite der erzeugten Strahlung im ungeseedeten Fall beträgt ca. 0,2 nm (s. Abb. 3.15). Das steht in hervorragender Übereinstimmung mit der theoretischen Abschätzung gemäß Abschnitt 1.5.2: Gleichung 1.48 ergibt eine Verstärkungsbandbreite $\Delta\nu$ von 1 nm, die sich durch die *dynamische Kompression* (Gl. 1.49) bei den 26 Umläufen p des Impulses im Resonator auf 0,2 nm verringert.

Im Folgenden werden weitere wichtige Eigenschaften näher betrachtet.

OPO-Moden: Der aufgebaute Ringresonator des OPO zeigt die in Abbildung 3.16 dargestellten longitudinalen Moden. Beide der Abbildung zugrunde liegenden Messungen wurden jeweils während einer kontinuierlichen Durchstimmung der DFB-Seedlaser-Wellenlänge um 70 pm durchgeführt: In rot ist die Leistungsüberhöhung der OPO-Ausgangsstrahlung zu sehen, die jedesmal eintritt, wenn die Seed-Strahlung resonant ist, also das Injection Seeding aktiv ist, in blau ist das Verhalten des Reflexes des Seed-Strahles am Ein-/Auskoppel-Spiegel des OPO („output coupler“ siehe z.B. in Abb. 3.3) bei abgeschaltetem Pumplaser zu sehen, wobei hier während der OPO-Resonanz eine Schwächung vorliegt. Zur relativen Wellenlängen-Kalibrierung wurde jeweils das Signal des Fabry-Perot-Interferometers mit aufgezeichnet (dargestellt in grau), zur absoluten Kalibrierung wurde zusätzlich eine CO_2 -Linie (Signal der 36 m-Multipasszelle) erfasst (in der Abbildung nicht dargestellt).

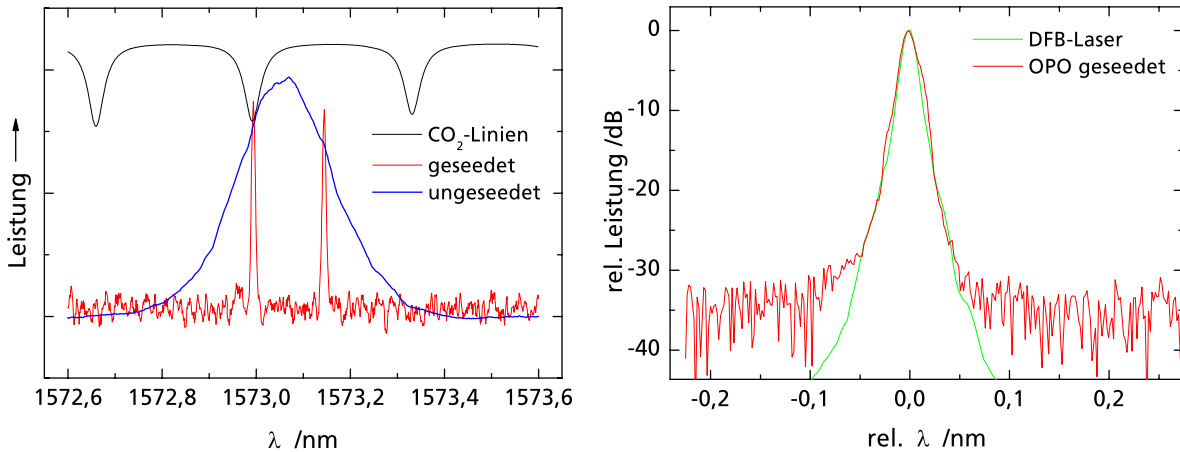


Abbildung 3.15: Messung des spektralen Verhalten des OPO – links: ungeseedeter Betrieb (blau), geseedeter Betrieb mit Online und Offline (rot), gerechnete CO_2 -Linien (schwarz); rechts: vergrößerte Darstellung des gemessenen OPO-Spektrums (rot) bei geseedetem Betrieb im Vergleich zum Spektrum des DFB-Seedlasers (grün)

Man erkennt an den Resonanzen, dass es neben dem Einfachumlauf auch einen Doppelumlauf gibt, d.h. der Ring schließt sich (für die Signalstrahlung) also erst nach zwei Umläufen des Impulses, was bei solchen Resonatoren auftreten kann. Der Abstand zur jeweils übernächsten Resonanz beträgt 3,25 MHz, was der optischen Weglänge eines Einfachumlaufes im Resonator entspricht. In diesem Beispiel ist dieser Doppelumlauf sehr deutlich ausgeprägt. Durch Justage ließ er sich zwar vermindern, aber nicht vollständig entfernen. Im Messbetrieb fiel er dadurch auf, dass bei der Feinabstimmung der Resonatorlänge durch das Piezoelement analog zur Darstellung in Abbildung 3.16 abwechselnd verschieden starke Ausgangsleistungen auftraten. Die jeweils stärkeren Moden zeigten stets eine bessere spektrale Reinheit und nur diese wurden für die Messungen verwendet.

Die passive Stabilität des OPO ist hervorragend, d.h. eine Nachregelung der Resonatorlänge durch das Piezoelement ist nur in Abständen von mehreren Minuten nötig. Im Rahmen dieser Arbeit konnte der Aufbau nicht mit einem automatischen Cavity-Kontroll-System ausgestattet werden. Durch die gute passive Stabilität war es dennoch vergleichsweise einfach, die mehrstündigen Validierungsmessungen unter permanenter manueller Nachregelung durchzuführen.

Abstimbarkeit: Bei der hier vorliegenden nicht-kritischen Phasenanpassung ist der Winkel zwischen Pumpstrahl und Kristallachse ϑ fest bei 90° . Daher ist die bei der *kritischen Phasenanpassung* gegebene Möglichkeit nicht vorhanden, die Wellenlänge der erzeugten Strahlung durch Drehung des Kristalls, also Veränderung des Winkels zwischen Pumpstrahl und Kristallachse, durchzustimmen. Der Effekt des non-collinear-phase-matching (siehe 1.4.2) lässt jedoch in begrenztem Umfang eine Durchstimmung der erzeugten Wellenlänge des freilaufenden OPO zu. Das wurde hier im Wesentlichen mittels Änderung des Strahlverlaufs der im OPO resonanten Signalstrahlung in der horizontalen Ebene durch eine Verkippung des in Abbildung 3.3 oben liegenden Spiegels durchgeführt

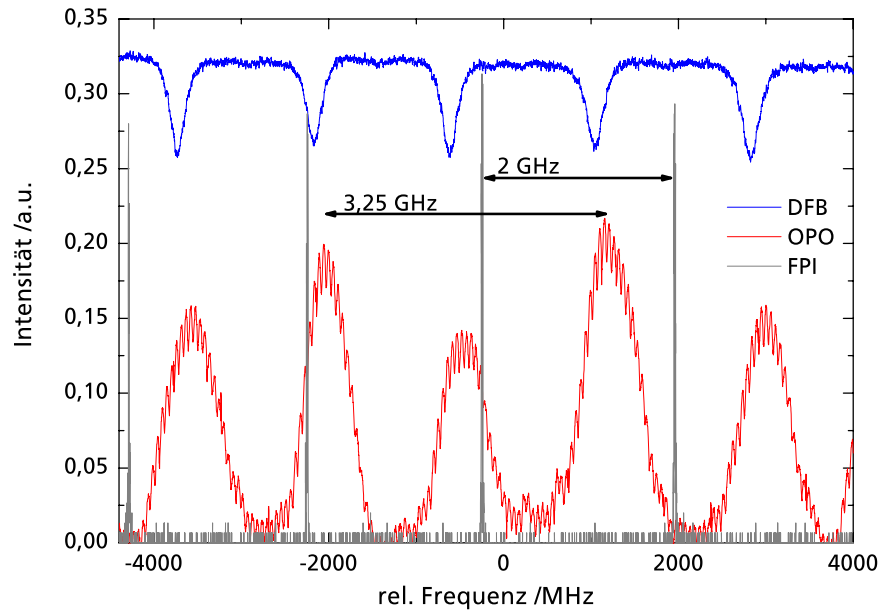


Abbildung 3.16: Gemessene Modenstruktur des aufgebauten OPO; blau: Messung mittels DFB-Seedlaser, rot: Leistungsüberhöhung des OPO, grau: Signale des FPI mit 2 GHz Abstand

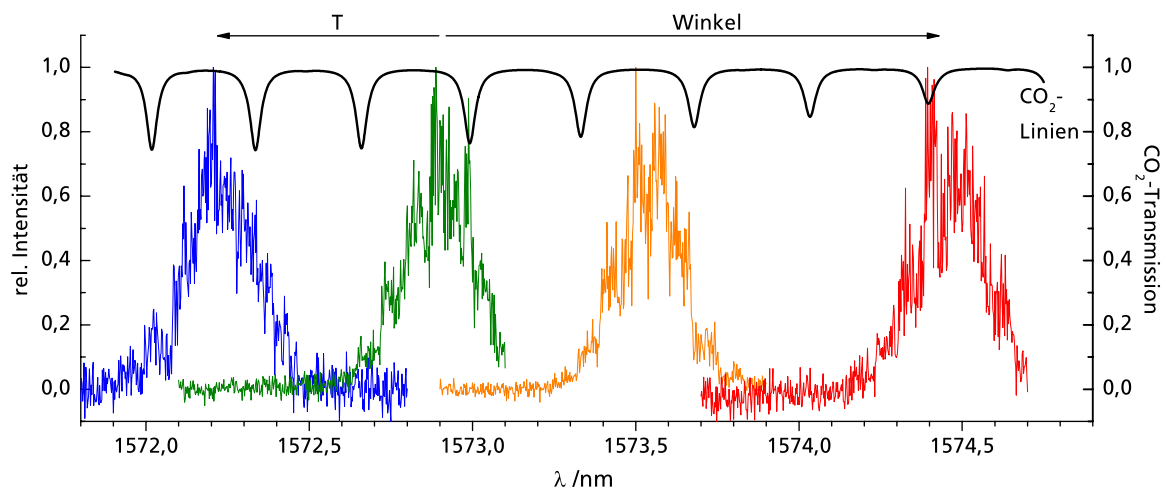


Abbildung 3.17: Messung des Durchstimmbereichs des aufgebauten OPO: Wellenlängen-Durchstimmung des ungeseedeten OPO mittels Temperatur-Variation (T) und non-collinear-phase-matching ($Winkel$); in diesem Bereich liegen acht CO_2 -Absorptionslinien (gerechnet)

($Winkel$ zwischen Pumpstrahl und Signalstrahl max. 1°). In Abbildung 3.17 ist der erreichte Durchstimmbereich der OPO-Ausgangsstrahlung zu sehen.

Durch die Halbwertsbreite und mit den Möglichkeiten, die emittierte Wellenlänge durch Änderung der Kristalltemperatur sowie mittels der nicht-kollinearen Phasenpassung durchzustimmen, ergibt sich ein für das Injection Seeding prinzipiell geeigneter Bereich von ca. 1572,1 nm bis 1574,6 nm (s. Abb. 3.17). Durch eine Variation der Pumpwellenlänge des Nd:YAG-Lasers lässt sich der Durchstimmbereich etwa um weitere $\pm 0,1$ nm erweitern.

Alles zusammen lässt einen Zugriff auf einige der Absorptionslinien in der ausgewählten Bande zu. Für die Testmessungen wurde die Linie bei 1572,99 nm ausgewählt, welche für die Messung der CO_2 -Teilchendichte als optimal identifiziert wurde (siehe Abschnitt 2.4.1).

Möchte man die für die Messung des CO_2 -Mischungsverhältnisses optimale Linie bei 1571,1 nm verwenden, muss man den OPO bei einer kritischen Phasenanpassung betreiben und den entsprechenden Kristall verwenden (z.B. KTP, x-z-Ebene, $\vartheta \approx 45^\circ$, s. Abb. 1.9). Technisch bedeutet das eine Erweiterung des beschriebenen Aufbaus um eine um die vertikale Achse drehbare und präzise justierbare Kristallhalterung. Diese Methode ist gut ausgereift und kommt bereits in Lidarsystemen zum Einsatz [119].

Vergleich mit Modellen: In der Literatur [127, 128, 129, 130] finden sich verschiedene zum Teil widersprüchliche Angaben über die thermo-optischen Koeffizienten (die Temperaturabhängigkeit der Brechungsindices n_x , n_y und n_z) von KTP. In Abbildung 3.18 ist eine Übersicht gegeben über die jeweils resultierende Abhängigkeit der erzeugten Wellenlänge von der Temperatur für einen KTP-OPO (auch die benötigten Sellmeierkoeffizienten stammen jeweils aus den angegebenen Quellen). Es ergeben sich Unterschiede in der Lage und den Steigungen der Kurven. Daraus folgt, dass eine Vorhersage des Temperaturverhaltens von KTP auf Basis der vorhandenen Daten für den Wellenlängenbereich bei 1,572 μm nicht möglich ist.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde das Temperaturverhalten experimentell untersucht. Es ergab sich eine Wellenlängenänderung von -180 pm pro +10 K Temperaturänderung für den Bereich bei 1,572 μm . Dieses Ergebnis steht damit in guter Übereinstimmung mit den Angaben von *Castech* [129], während die übrigen Modelle das beobachtete Verhalten nicht korrekt wiedergeben. Diese Aussage gilt allerdings nur für diesen Wellenlängenbereich. In der Literatur finden sich bisher keine Berichte über entsprechende Messungen.

Leistung: Die Ausgangsleistung des OPO bestimmt direkt die Intensität des empfangenen Target-Reflexes. Um ein gutes Signal-Rausch-Verhältnis und damit einen geringen statistischen Fehler zu erzielen, muss die Ausgangsleistung möglichst hoch sein.

Die Konversionseffizienz des aufgebauten OPO-Systems liegt bei etwa 10 %. Die Ausgangsenergie der Messimpulse lag bei den gezeigten Testmessungen zwischen 5 und 10 mJ. Das ist für diese Anwendung prinzipiell absolut ausreichend, wie die Simulationen in Abschnitt 2.4.2 zeigen. Daher wurde eine Optimierung des OPO in Hinblick auf eine Steigerung der Konversionseffizienz nicht vorgenommen. In Abbildung 3.19 ist die Ausgangsenergie pro Impuls, aufgetragen gegen die Pumpenergie, zu sehen. Es sind keine Sättigungseffekte zu erkennen.

Die Schwellen des OPO, also die Pumpenergie, ab der die Wellenlängenkonversion effektiv stattfindet, lag für den ungeseedeten OPO bei 55 mJ und im geseedeten Fall bei 40 mJ. Im Messbetrieb lag die Pumpenergie stets zwischen 70 und 100 mJ, d.h. der OPO wurde 1,3 bis 1,8fach über der Schwelle betrieben. Die Eigenschaften des aufgebauten OPO-Systems sind in Tabelle 3.6 zusammengefasst.

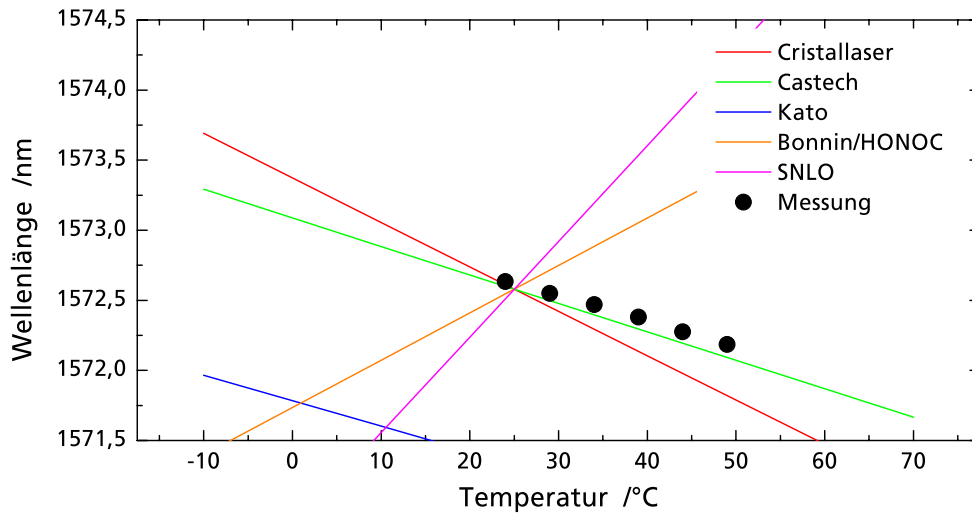


Abbildung 3.18: Ausgangswellenlänge eines KTP-OPO in Abhängigkeit von der Temperatur; verschiedene Modelle aus: Cristallaser [130], Castech [129], Kato et al. [127], Bonnin (Cristallaser) bzw. HONOC (Handbook of nonlinear optical crystals [62]), SNLO [67] mit Daten aus [128] und [130]

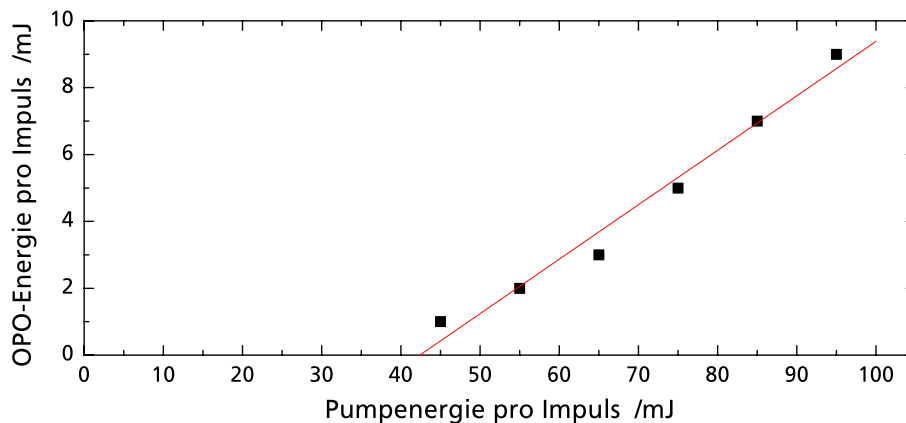


Abbildung 3.19: Messung der OPO-Ausgangsenergie in Abhängigkeit von der Pumpenergie bei geseedetem OPO

Ausgangsenergie pro Impuls	10 mJ
Konversionseffizienz	10 %
Durchstimmbereich	1572,1 nm bis 1574,6 nm
erreichbare CO ₂ -Linien	8 Linien mit E'' zw. 8 u. 133 cm ⁻¹
Impulslänge	5 ns
Schwelle (ungeseedet)	55 mJ
Schwelle (geseedet)	40 mJ
Bandbreite (ungeseedet)	0,2 nm

Tabelle 3.6: Wichtige Eigenschaften des aufgebauten KTP-OPO-Systems

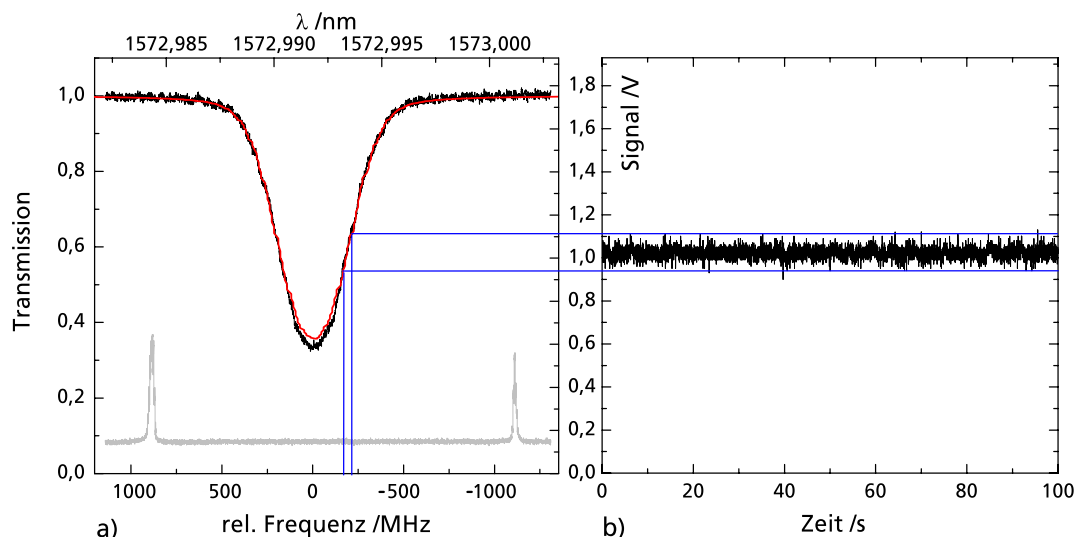


Abbildung 3.20: *Transmission bzw. gemessene Signalstärke bei Messung der Stabilität des Online-Seedlasers: a) Durchstimmung der Wellenlänge über eine CO₂-Linie (36 m-Multipasszelle), rot: gerechnetes Voigt-Profil, grau: FPI Marken; b) zeitliche Entwicklung des Signals für den auf die Flanke der Linie stabilisierten Seedlaser*

Wellenlängenstabilität des Laborsystems

Die Wellenlängenstabilität wird durch mehrere Komponenten des Systems beeinflusst. Die erreichten Genauigkeiten werden im Folgenden dargelegt.

36 m-Multipasszelle: In Abbildung 3.20 a) ist ein Scan über die in den Testmessungen verwendete CO₂-Linie bei einem Zellendruck von 10 hPa dargestellt. Gleichzeitig wurde das Signal des FPI aufgezeichnet, wodurch der Scan eine Kalibrierung bzgl. der relativen Wellenlängen erhält. Zum Vergleich ist das entsprechende, aus HITRAN-Daten berechnete Voigt-Profil dargestellt. Man erkennt, dass die Linienform sehr gut wiedergegeben wird. Die Abweichung der Amplitude liegt innerhalb der Fehlerangabe für die Linienstärke bei HITRAN. Die Flanke der Linie bietet in der aktuellen Konfiguration mit ca. 40 mV Signaländerung pro 10 MHz Wellenlängenänderung eine genügend große Empfindlichkeit für eine präzise Regelung.

Die Sollwertbestimmung für die Flankenregelung wird anhand eines derartigen Linienscans durchgeführt. Die Lage des Sollwertes auf der Flanke wird aus dem Druckshift bestimmt, den die atmosphärische Linie gegenüber der Referenzlinie in der Zelle aufweist (vgl. Abb. 3.5).

Diese Methode kann allerdings zu einem Wellenlängen-Offset des Online-Seedlasers führen. Eine Quelle hierfür ist ein fehlerhaft angenommener Druckshift. Für den hier verwendeten, der Literatur entnommenen Druckshift wird ein Fehler von 50 MHz angegeben [48]. Durch eine gezielte, möglichst präzise spektroskopische Bestimmung kann dieser Fehler deutlich minimiert werden. Zu weiteren Abweichungen von der angestrebten Wellenlänge kann es dadurch kommen, dass die Sollwertbestimmung für die PID-Regelung fehlerhaft ist, z.B. durch zu starkes Signalrauschen. Zur Abschätzung des hier auftre-

tenden Fehlers wurden nacheinander mehrere Linienscans durchgeführt und die jeweils ermittelten Regelungs-Sollwerte aufgezeichnet. Aus ihrer Streuung wurde ein resultierender systematischer Wellenlängen-Offset für die vorliegende Konfiguration von maximal 10 MHz abgeleitet. Im Messbetrieb ist es nötig, den Sollwert laufend neu zu bestimmen, um eventuelle Schwankungen des Sollwerts aufgrund von Signaländerungen, z.B. durch thermische Änderungen im Aufbau, zu kompensieren.

DFB-Seedlaser: Die per Regelung erreichte Wellenlängenstabilität der Seedlaser auf längerer Zeitskala wurde anhand der Multipasszelle verifiziert (s. Abb. 3.20 b). Analysiert wurde hierbei das zeitliche Verhalten der gemessenen Transmission auf der Linienflanke. Anhand eines kalibrierten Linienscans wurden daraus die Wellenlängenabweichungen abgeleitet. Es ergab sich für Online ein stabiler Mittelwert (keine Drifts) mit einem überlagerten Jitter, also mit kurzzeitigen Abweichungen von maximal 50 MHz bei einer Standardabweichung von 5 MHz.

Die Methode der Offline-Stabilisierung mittels des internen FPI der DFB-Laserdioden wurde auf die gleiche Weise überprüft. Es ergab sich eine Standardabweichung von weniger als 20 MHz im Minutenbereich. Da das interne FPI nicht temperaturstabilisiert ist, können auf längerer Zeitskala auch größere Drifts auftreten. Die geforderte Genauigkeit von 2 GHz liegt innerhalb der Auflösung des OSA. Es konnten damit keine über 1,3 GHz hinausgehenden Abweichungen festgestellt werden.

OPO: Eine eventuell auftretende Abweichung der vom OPO erzeugten Wellenlängen gegenüber den Seeder-Wellenlängen kann mit einer Überlagerungs-Messung (*Heterodyn-Messung*) nachgewiesen und quantifiziert werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde diese Methode lediglich in separaten Messungen getestet. Die Ergebnisse sind hier dargelegt.

Abbildung 3.21 zeigt den Zeitverlauf eines OPO-Impulses ohne Überlagerung mit dem Seeder (a) und mit Überlagerung (b, c). In b) wurde der OPO-Resonator mittels des Piezos leicht verstimmt. Die Fouriertransformation ergibt hier eine Differenz zwischen OPO und Seeder von 560 MHz. Das kann durch den Effekt des „cavity pulling“ [124] erklärt werden. In c) ist ein Impuls bei gut abgestimmtem Resonator gezeigt. Hier ist die Schwebung nahezu verschwunden.

Spektrale Reinheit

Mit dem in Abschnitt 3.2.6 beschriebenen Aufbau wurde die spektrale Reinheit der erzeugten Messstrahlung ermittelt.

Die berechnete Filterkurve, also die gesättigte CO₂-Linie in der Multipasszelle, hat im Minimum eine Transmission von ca. $3 \cdot 10^{-7}$. Aufbaubedingt ergibt sich hier allerdings eine untere Grenze für die noch messbare Filterung der eingekoppelten Strahlung. Bei Testmessungen mit einer der DFB-Laserdioden wurde eine minimale Transmission von 0,1 % quantifiziert, obwohl aufgrund ihrer bekannten spektralen Eigenschaften eine deutlich geringere Transmission zu erwarten ist. Das ist vermutlich auf Streulicht zurückzuführen. Da im normalen Messbetrieb bei der Bestimmung der spektralen Reinheit gepulstes Licht vorliegt, kann im zeitlich hochaufgelösten Messsignal der OPO-Impuls weitestgehend vom

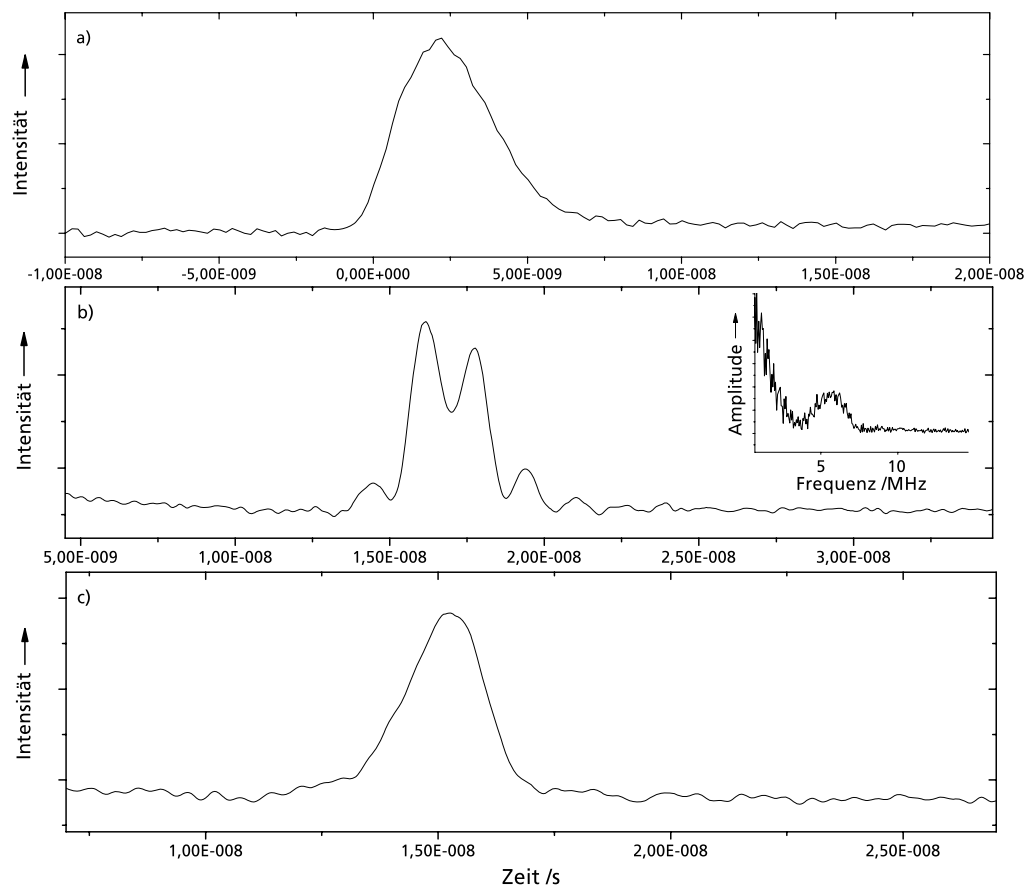


Abbildung 3.21: Überlagerungsmessung von OPO und Online-Seedlaser; dargestellte OPO-Impulse: ohne Überlagerung (a), Überlagerung bei verstimmtm Resonator mit korrespondierendem Fourier-Spektrum (b), Überlagerung bei abgestimmtem Resonator (c)

Streulicht unterschieden werden. Daher ist zu erwarten, dass prinzipiell auch niedrigere Transmissionen als 0,1 % bzw. bessere spektrale Reinheiten als 99,9 % nachweisbar sind.

Die mit diesem Aufbau erreichte Nachweisgrenze ist aber in jedem Fall für die hier beschriebene Anwendung gemäß der Simulationen ausreichend. Daher ist diese Methode sehr gut geeignet zur Kontrolle des systematischen Fehlers, der von spektralen Unreinheiten herrührt.

In Testmessungen wurde eine maximale spektrale Reinheit der Online-Messstrahlung von 99,9% erreicht. Bei den gezeigten Validierungsmessungen lag sie bei > 99,3%.

Strahlprofil

Die räumliche Strahlqualität von OPO-erzeugter Laserstrahlung ist oft nicht sehr hoch, d.h. das Strahlprofil, also die Intensitätsverteilung über den Strahlquerschnitt, kann inhomogen sein und es können große Strahldivergenzen auftreten [81], was ein hohes M^2 bedeutet [131]. Exakte quantitative Messungen am vorliegenden System diesbezüglich konnten nicht vorgenommen werden, da das einzige, vor Ort zur Verfügung stehende Strahlanalyse-System auf Basis einer Silizium-Infrarot-Kamera für den hier verwendeten Wellenlängenbereich nicht geeignet ist. Hierfür wird eine InGaAs-Infrarot-Kamera

benötigt. Es war allerdings möglich, grobe Abweichungen von einem idealen Profil anhand von Infrarot-Sensor-Karten, die auftreffende Infrarotstrahlung durch eine spezielle Beschichtung sichtbar machen, zu erkennen. Auf diese Weise wurde bereits deutlich, dass es schwierig ist, eine runde und homogene Energieverteilung über den Strahlquerschnitt zu erreichen. Typischerweise war das Profil bei geseedetem OPO stark strukturiert.

Diese grobe Beurteilung des Strahlprofils zeigte in vielen Testmessungen in reproduzierbarer Weise, dass die Messergebnisse bei augenscheinlich schlechten räumlichen Strahlprofilen, insbesondere bei wenig Intensität in der Querschnitts-Mitte, von den erwarteten Werten abwichen. Es ist daher anzunehmen, dass die auftretenden Messfehler zu einem erheblichen Teil auf schlechte und zeitlich variierende Strahlprofile zurückzuführen sind.

Aufgrund der begrenzten Untersuchungsmöglichkeiten wurde die Beeinträchtigung der Messgenauigkeit aufgrund der räumlichen Strahlqualität im Rahmen der Diskussion der Ergebnisse der Validierungsmessungen (s. Abschnm 5.1.3) nur qualitativ betrachtet.

3.3.2 Abschätzung der zu erwartenden Messgenauigkeit

Aus einigen der gerade dargelegten Eigenschaften des Laboraufbaus lassen sich anhand der Ableitungen, die im Kaptitel „Numerische Simulation“ behandelt wurden, die resultierenden CO₂-Messfehler abschätzen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3.7 zusammengestellt.

Fehlerquelle	Genauigkeit	CO ₂ -Messfehler
Jitter, Seeder On (1σ)	5 MHz	< 0,1 %
Offset, Seeder On	60 MHz *	< 0,1 % ¹⁾ 0,25 % ²⁾
Jitter, Seeder Off (1σ)	20 MHz	<< 0,1 %
Offset, Seeder Off	< 1,3 MHz	< 0,1 %
spektrale Reinheit	99,9 %	0,1 %
statistischer Fehler	–	< 0,1 %
Summe Messgenauigkeit	–	< 0,2 % ¹⁾ < 0,3 % ²⁾

Tabelle 3.7: *Zu erwartende Messgenauigkeit limitiert durch die erreichten Genauigkeiten zentraler Komponenten des Laboraufbaus; * durch eine präzise Bestimmung des Druckschifts kann diese mögliche Abweichung deutlich reduziert werden; ¹⁾ für eine Messung in horizontaler Richtung, ²⁾ für eine vertikale Messung aus 10 km Höhe; als Summe wurde die geometrische Summe der betrachteten Einzel-Fehler angenommen.*

Es zeigt sich, dass die betrachteten, wesentlichen Komponenten des Laborsystems bei optimalen Verhalten eine Messungenauigkeit von unter 0,3 % hervorrufen. Ein Vergleich mit den in 2.4.3 formulierten Anforderungen erfolgt in Abschnitt 5.2.

Kapitel 4

Validierung

Die bisherige Betrachtung einzelner Aspekte, wie z.B. das Erreichen einer hohen Genauigkeit der Online-Stabilisierung, kann nur eine notwendige Voraussetzung für eine hohe Genauigkeit der Methode darstellen. Unbekannte Ursachen von Messfehlern können auf diese Weise nicht entdeckt und untersucht werden.

Erst eine Validierung stellt die Qualität der Ergebnisse des neuen Systems sicher. Üblicherweise erfolgt das durch eine simultane Messung mit einem kalibrierten Vergleichsgerät und eine genaue Analyse der Ergebnisse. Im vorliegenden Fall wurden Abschnitte des Tagesganges des atmosphärischen CO₂-Mischungsverhältnisses gleichzeitig mit dem beschriebenen IPDA-System sowie mit einem In-situ-Messgerät gemessen.

In-situ-Methoden sind nach dem aktuellen Stand der Technik Standardverfahren zur Messung von CO₂ [132]. Es werden Messgenauigkeiten von unter 0,1 μmol/mol erreicht. Da es sich dabei jedoch um Punktmessungen handelt, ergeben sich Einschränkungen für IPDA-Vergleichsmessungen. Die einzige derzeit bestehende Möglichkeit zur Bestimmung von CO₂-Säulengehalten ist die Verwendung eines *Fourier Transform Spectrometer* (FTS) [133], also einer passiven Messmethode. Durch die großen Unterschiede der Messverfahren sind auch hiermit direkte Vergleichsmessungen nicht einfach durchzuführen.

Für eine erste Beurteilung des aufgebauten Systems eignet sich der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Vergleich mit einer In-situ-Messung jedoch sehr gut.

Zur Charakterisierung eines Systems ist es zudem sinnvoll, spezielle Messungen durchzuführen, bei denen vermutete Fehlerquellen ausgeschlossen werden können. Dazu gehören Nullmessungen, auf die nun zunächst eingegangen wird.

4.1 Nullmessungen

Bei der Optimierung eines Messsystems und zur Charakterisierung von Fehlern ist es vorteilhaft, Messungen durchzuführen, die unabhängig von der zu messenden Größe sind. Das bedeutet, dass alle dann registrierten Abweichungen vom erwarteten Wert systembedingt sind. Das kann für das hier beschriebene System auf verschiedene Weise erfolgen:

Methode a) Man konfiguriert das System derart, dass die Messgröße selbst nicht erfasst wird, was z.B. durch die Nutzung einer extrem kurzen Messstrecke erreicht wird. Die

CO₂-Absorption ist also nahezu Null. Vorteile: Es liegt ein starkes Messsignal vor und das Target kann beliebig definiert werden. Nachteil: Die Konfiguration weicht stark von der des normalen Messbetriebs ab.

Methode b) Man wählt einen Zeitraum, in dem das CO₂-Mischungsverhältnis bekanntermaßen konstant ist. Die Bezeichnung Nullmessung bezieht sich hier auf das Fehlen von Variationen der Messgröße. Vorteil: Die Konfiguration des Systems kann genau der des normalen Messbetriebs entsprechen. Nachteil: Ein Bias kann nur durch eine simultane Messung mit einem Vergleichsgerät bestimmt werden.

Methode c) Das Setzen der „Online“-Wellenlänge neben die Absorptionslinie (so wie Offline) erlaubt eine Messung ohne CO₂-Absorption. Vorteil: Das System hat die gleiche Konfiguration wie beim normalen Messbetrieb bezüglich der Länge der Messstrecke und bzgl. des Targets. Nachteil: Durch die andere „Online“-Wellenlänge kann im Vgl. zum normalen Messbetrieb ein abweichendes Systemverhalten vorliegen.

Während des Aufbaus und der Optimierung des vorliegenden Systems wurde im Wesentlichen die Methode a) verwendet und zur besseren Beurteilung der Messfehler zusätzlich Methode b).

4.1.1 Messung über kurze Distanz

Bei diesen Messungen (gemäß Methode a)) lag die Empfangsoptik stets in einer speziellen, vereinfachten Konfiguration vor (z.B. in der in Abb. 4.1 gezeigten). Die Messung ist daher unempfindlicher in Bezug auf folgende Aspekte: Eine unvollständige Abbildung des vom Target zurückgestreuten Laserspots auf den Detektor, Abweichungen, die durch Inhomogenitäten des Targets hervorgerufen werden und Abweichungen durch unterschiedliche Strahlprofile für Online und Offline. Da die Messstrecke zudem nur eine Länge von 50 m hatte, beträgt die CO₂-Absorption lediglich 0,7 %. Daher wirken sich weder Variationen des CO₂-Gehaltes, die während der Messung eventuell auftreten können, noch spektrale Unsicherheiten der Messstrahlung auf das Messergebnis aus und können somit vernachlässigt werden. Um ein definiertes Target zu erhalten, wurde eine Platte aus Karton aufgebaut (100 cm · 50 cm). Es lag ein sehr großer Betrachtungswinkel von etwa 10 mrad vor. Das erlaubt eine Erfassung der Messstrahlung auch bei schlechter Strahlqualität, bei der eventuell große Strahldivergenzen auftreten.

Diese Konfiguration ist also toleranter gegenüber einer schlechten räumlichen Strahlqualität als es die normale Messkonfiguration ist. Es besteht zudem eine Unempfindlichkeit gegenüber spektralen Unsicherheiten. Mit dieser Anordnung ein Messergebnis mit geringsten Abweichungen zu erreichen, ist daher eine notwendige Voraussetzung bei der Entwicklung des Laboraufbaus. Bei der iterativen Optimierung der Empfangsoptik kamen derartige Nullmessungen zum Einsatz.

4.1.2 Messung über lange Distanz

Da bei diesen Messungen (Methode b)) dieselbe Konfiguration wie bei der gezeigten In-situ-IPDA-Vergleichsmessung vorlag, war die CO₂-Absorption wirksam. Der Unter-

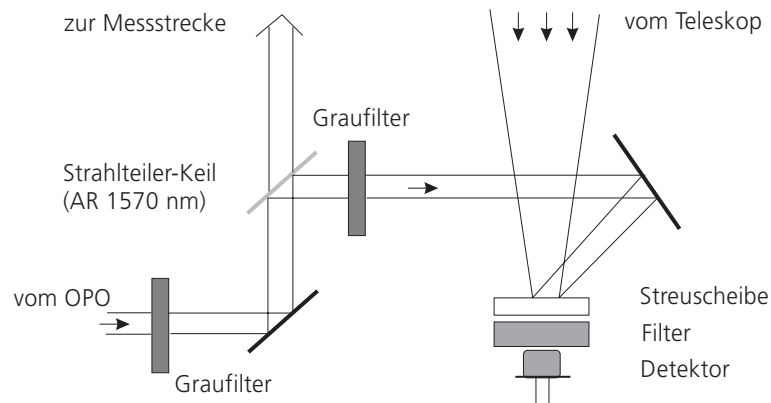


Abbildung 4.1: *Schema der vereinfachten Konfiguration der Empfangsoptik für Nullmessungen über kurze Distanz*

schied ist, dass die Messung nachmittags stattfand, was gemäß der durchgeführten In-situ-Messungen bedeutet, dass sich das Kohlendioxid-Mischungsverhältnis auf einer Zeitskala von unter einer Stunde nahezu nicht verändert. In der Analyse werden daher die Abweichungen von einem als konstant angenommenen Wert betrachtet.

Vergleiche zwischen den bei den drei realisierten Mess-Konfigurationen (Nullmessung ohne CO₂-Absorption, Nullmessung mit CO₂-Absorption und CO₂-Vergleichsmessung) jeweils erreichten Messgenauigkeiten lassen Rückschlüsse auf die vorhandenen Fehlerquellen zu.

4.2 In-situ-IPDA-Vergleichsmessungen

Für Vergleichsmessungen des aufgebauten IPDA-Systems mit einem weiteren Messgerät eignen sich die tageszeitlichen Variationen des atmosphärischen CO₂-Mischungsverhältnisses sehr gut. Je nach Wetterlage können diese gerade in den Frühjahr- und Sommermonaten auf einer Zeitskala von Stunden in Bodennähe erhebliche Amplituden erreichen. Da die Messstrecke in der aktuellen Konfiguration in horizontaler Richtung in ungefähr 12 m Höhe über dem Erdboden verläuft, sind also optimale Testbedingungen gegeben.

4.2.1 Der natürliche CO₂-Tagesgang

Der natürliche Tagesgang in Bodennähe zeigt im Allgemeinen, abhängig von der Klimazone, relativ zu den Tagesmittelwerten tagsüber niedrige und nachts erhöhte Mischungsverhältnisse. In Garmisch-Partenkirchen, als Beispiel für einen Standort in der gemäßigten Klimazone, wurden mittlere Amplituden von 30 bis 70 $\mu\text{mol/mol}$ in den Sommermonaten und 10 bis 20 $\mu\text{mol/mol}$ in den Wintermonaten gemessen [134]. Diese Variation beruht im Wesentlichen auf der Aktivität der Vegetation: Tagsüber entnehmen die Pflanzen der Atmosphäre Kohlendioxid und produzieren unter Lichteinfluss und Wasseraufnahme Sauerstoff und Glukose (Photosynthese), nachts geben sie Kohlendioxid ab (Respiration)

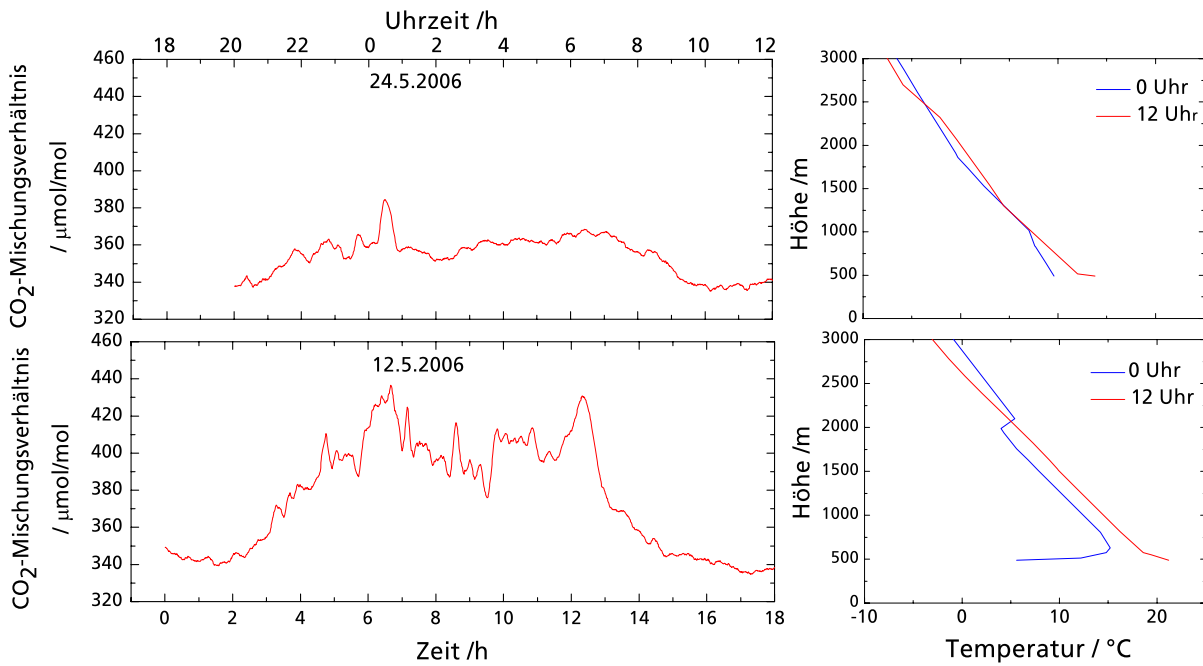


Abbildung 4.2: links: Typische Tagesgänge des Kohlendioxid-Mischungsverhältnisses in Bodennähe für verschiedene Wetterlagen, gemessen mit dem In-situ-Messaufbau; rechts: entsprechende vertikale Temperaturprofile aus Radiosondenaufstiegen (Oberschleißheim b. München)

[135, 136]. Die Amplitude dieser tageszeitlichen Variationen wird neben der Jahreszeit (Vegetationsperiode) durch meteorologische Einflüsse bestimmt. Während der Wachstumsperiode in den Frühjahr- und Sommermonaten ist die Aktivität der Vegetation besonders hoch. Bildet sich nach einem warmen Tag abends bei klarem Himmel zudem eine Bodeninversion aus [137], sammelt sich das CO₂ in dieser Inversionsschicht an und kann Mischungsverhältnisse weit über dem Tagesmittelwert erreichen (bis über 500 $\mu\text{mol/mol}$). Bricht die Inversion am nächsten Morgen durch einsetzende Konvektion zusammen, verursacht durch die Sonneneinstrahlung, fällt das Mischungsverhältnis innerhalb von wenigen Stunden stark ab. Bis zum Abend bleibt es dann auf einem vergleichsweise konstanten, niedrigem Wert [54]. Für die Vergleichsmessungen wurde die Situation der schnellen morgendlichen Mischungsverhältnis-Abnahme gewählt.

In Abbildung 4.2 ist die typische Entwicklung des CO₂-Mischungsverhältnisses jeweils von abends bis zum Mittag des nächsten Tages für zwei Wettersituationen dargestellt. Die Messungen fanden mit dem im nächsten Abschnitt beschriebenen In-situ-Messaufbau statt. Der 11. und 12. Mai 2006 waren warme und klare Frühjahrstage, am 23. und 24. Mai herrschte kühles und bewölktetes Wetter. In der Abbildung rechts sind die vertikalen Temperaturprofile jeweils für Mitternacht und den darauffolgenden Mittag gezeigt. Sie wurden mittels Radiosonden-Aufstiegen in Oberschleißheim bei München gewonnen. Deutlich zu erkennen ist die ausgeprägte nächtliche Bodeninversion am 12. Mai.

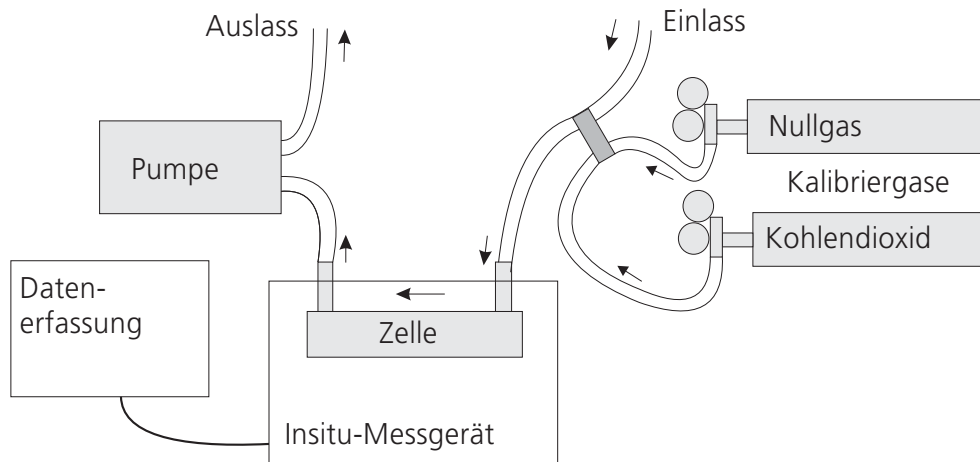


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung des In-situ-Messaufbaus

4.2.2 Beschreibung des In-situ-Messaufbaus

Das Detektionsprinzip des verwendeten, kommerziell erhältlichen CO₂-in-situ-Messgerätes („Carbondio“, Pewatron AG, Wallisellen/Zürich) basiert auf der Absorption von Licht. Es wird dabei die Absorption einer ganzen Bande von CO₂-Linien im Spektralbereich um 4,25 μm genutzt. Der gesamte im Rahmen dieser Arbeit zusammengestellte Messaufbau des In-situ-Systems wird in Abbildung 4.3 gezeigt. Die zu messende Umgebungsluft wird von einer Pumpe angesaugt (ca. 1 l/min) und durchströmt eine Absorptionszelle mit 10 cm Länge. Das Licht einer breitbandigen Lichtquelle passiert die Zelle und trifft auf zwei Detektoren, die mit Interferenzfiltern mit verschiedenen spektralen Charakteristiken ausgestattet sind. Der eine Filter lässt nur Licht mit Wellenlängen durch, die außerhalb der Absorptionsbande liegen, der andere nur Wellenlängen, die auf der Bande liegen. Aus dem Verhältnis der Signale beider Detektoren berechnet das Gerät einen Spannungswert zwischen 0 und 10 V, der proportional zum Mischungsverhältnis von Kohlendioxid in Luft ist. Der Wert ist temperaturkorrigiert.

Für eine genaue Messung ist es notwendig, eine Kalibrierung des Gerätes durchzuführen. Das geschieht einerseits durch die Bestimmung des Nullpunktes, während das Gerät von Nullgas (hier synthetische Luft: 80% Stickstoff, 20% Sauerstoff) durchströmt wird. Zum anderen wird ein Messpunkt gesetzt, während das Gerät von einem Gemisch aus Kohlendioxid und synthetischer Luft mit bekanntem Mischungsverhältnis (hier: 522 $\mu\text{mol/mol}$) ausgesetzt ist.

Der Hersteller des Gerätes gibt eine systematische Messgenauigkeit von 2 % an. Eigene Messungen mit Hilfe des Kalibriergases stimmen damit überein. Der statistische Fehler bei 10 Minuten Mittelungsdauer liegt bei 0,2 %. Das Mischungsverhältnis des Kalibriergases (Kohlendioxid 4.5, Air Liquide, Düsseldorf) ist ebenfalls fehlerbehaftet. Hier gibt der Hersteller $\pm 10 \mu\text{mol/mol}$ an, also $\pm 1,9 \%$, was zu einem entsprechenden Bias auf den Messergebnissen führt.

4.2.3 Durchführung der In-situ-IPDA-Vergleichsmessungen

Die gezeigten In-situ-IPDA-Vergleichsmessungen fanden am 13. und 14. Juni 2006 statt. An beiden Tagen lag klares Frühsommerwetter vor. In den Nächten bildeten sich jeweils ausgeprägte Bodeninversionen – die entsprechenden Radiosondenmessungen zeigen Kurven, die der vom 12. Mai in Abbildung 4.2 entsprechen.

Die IPDA-Messung erfolgte vom Labor im 3. Stock des Gebäudes (Institut für Physik der Atmosphäre, DLR Oberpfaffenhofen) aus in Richtung Süd-Ost in ca. 12 m Höhe über dem Erdboden über die Roll und Startbahnen des Sonderflughafens Oberpfaffenhofen hinweg. Als Target diente eine Baumgruppe (Foto in Anhang E.). Die Länge der Messstrecke betrug 1912 m. Die Umgebungsluft für die In-situ-Messung wurde außerhalb des Labors angesaugt.

Die IPDA-Messungen begannen jeweils am frühen Morgen, um den erwarteten starken Abfall des Kohlendioxid-Mischungsverhältnisses messen zu können, und dauerten ungefähr sechs Stunden. Das In-situ-Gerät zeichnete einen etwas längeren Zeitraum auf, um das Bild des CO₂-Tagesganges zu vervollständigen.

4.2.4 Auswertung

Zur Berechnung des CO₂-Mischungsverhältnisses aus den gemessenen Leistungen P wurde die Software-Entwicklungsumgebung *IDL* eingesetzt.

Die Auswertung basiert auf Gleichung 1.29:

$$mr_{CO_2} = \frac{1}{2 \cdot N_{Luft} \cdot \Delta\sigma \cdot R} \cdot \ln\left(\frac{1}{T}\right) \quad \text{mit} \quad T = \frac{\sum_i (P_{on,i}/P_{on,i}^{ref})}{\sum_i (P_{off,i}/P_{off,i}^{ref})} \quad (4.1)$$

wobei T die Transmission ist. $P_{on,i}$ bzw. $P_{off,i}$ sind die empfangenen, untergrundkorrigierten Leistungen im Einzelschuss und $P_{on,i}^{ref}$ bzw. $P_{off,i}^{ref}$ die jeweils korrespondierenden Leistungsreferenz-Messungen. Die Mittelung erfolgte also vor der Berechnung der Transmission und vor der Berechnung des Logarithmus. Es ist ein Standardverfahren bei DIAL- oder IPDA-Auswertungen, die Mittelung zur Verminderung des Signal-Rauschens auf diese Weise durchzuführen. Es wird in der Literatur als „log after averaging“ bezeichnet [53]. Dadurch wird ein Bias vermieden, der sich ansonsten bei starkem Signalrauschen durch die Nichtlinearitäten der Gleichung ergeben würde.

Die Berechnung des differentiellen Wirkungsquerschnittes $\Delta\sigma$ erfolgte wie in Abschnitt 1.2.2 beschrieben anhand von *HITRAN96*-Daten [44]. Die Teilchendichte der Luft N_{Luft} wurde mit der idealen Gasgleichung ermittelt. Die benötigten Daten über Temperaturverlauf und Luftdruck wurden von der hauseigenen Wetterstation ermittelt. Es fand keine weitere Korrektur oder Kalibrierung statt. Es handelt sich damit um vollständig unabhängige Messungen.

Die vom In-situ-Messgerät ausgegebenen Spannungswerte wurden mit Hilfe ermittelter Kalibrierdaten in Mischungsverhältnisse umgerechnet.

4.2.5 Abschätzung der zu erwartenden Messunsicherheit

Da das Messsystem bei den Validierungsmessungen aus technischen Gründen nicht alle erreichten Genauigkeiten, die in Abschnitt 3.3.2 zusammengestellt wurden, gleichzeitig liefern konnte, werden in diesem Abschnitt die speziell für die Validierungsmessungen erwarteten Messfehler abgeschätzt.

Die genaue Betrachtung der tatsächlich aufgetretenen Messfehler erlaubt schließlich im Vergleich mit den hier berechneten Fehlern Rückschlüsse auf mögliche Fehlerquellen (s. Kapitel 5).

Spektrale Unsicherheiten

Bei den Validierungsmessungen konnte aus technischen Gründen keine automatische Wellenlängenstabilisierung der Seedlaser erfolgen. Das Signal der 36 m-Multipasszelle wurde jedoch erfasst, beobachtet und die Online-Seeder-Wellenlänge bei einem Drift gegebenenfalls manuell nachgeregelt (hierbei: Regelung auf das Linienminimum). Daher wird für die Online-Wellenlänge ein maximal möglicher Offset von 200 MHz abgeschätzt, für Offline maximal 1,3 GHz. Die DFB-Laserdioden halten erfahrungsgemäß nach einer Aufwärmphase auch ungeregelt die Wellenlänge relativ stabil mit Abweichungen von maximal ± 100 MHz, wobei es sich um Drifts in der Größenordnung von mehreren 10 Minuten handelt.

Da keine automatische Cavity-Kontrolle vorlag, ist davon auszugehen, dass die spektrale Reinheit während der mehrstündigen Messungen nicht konstant war und dass zusätzlich zeitlich variable Wellenlängen-Differenzen zwischen OPO und Seedlaser auftraten, aufgrund des in Testmessungen beobachteten *cavity pulling* (s. 3.3.1). Es wird abgeschätzt, dass dabei keine Drifts von über 100 MHz stattgefunden haben. Andernfalls wäre erfahrungsgemäß gleichzeitig eine Abnahme der Ausgangsleistung und ein deutlicher Verlust der spektralen Reinheit zu registrieren gewesen. Die spektrale Reinheit lag während der Validierungsmessungen bei besser als 99,3 %. In Tabelle 4.1 sind neben den abgeschätzten Genauigkeiten die daraus resultierenden, maximalen Messfehler angegeben.

Größe	Genauigkeit	max. Fehler Mischungsverhältnis
Drift, Seeder Online	100 MHz	1 %
Offset, Seeder Online	200 MHz	2 %
Drift, Seeder Offline	100 MHz	$\ll 0,1$ %
Offset, Seeder Offline	1,3 GHz	$< 0,1$ %
Drift, OPO Online	100 MHz	1 %
Drift, OPO Offline	100 MHz	$\ll 0,1$ %
spektr. Reinheit	99,3 %	0,4 %

Tabelle 4.1: *Abgeschätzte spektrale Genauigkeiten und daraus resultierende Messfehler*

Erwartete Übereinstimmung zwischen IPDA- und In-situ-Messungen

Da die beiden Messmethoden unterschiedliche Volumina der Atmosphäre erfassen, ist eine Übereinstimmung im Subprozentbereich bei den Vergleichsmessungen nicht zu erwarten. Das In-situ-Gerät misst an einem Punkt, während die IPDA-Messung eine Messstrecke von diesem Punkt aus bis in knapp zwei Kilometern Entfernung erfasst. Letzteres bedeutet eine räumliche Mittelung, weswegen prinzipiell ein glatterer Messkurvenverlauf erwartet wird.

Hinzu kommt, dass während der Messungen die Situation einer sich auflösenden nächtlichen Bodeninversion vorlag, also CO₂-angereicherte bodennahe Schichten beginnen, sich mit den darüberliegenden CO₂-ärmeren Luftschichten zu vermischen, bis ungefähr ab Mittag ein stabiles Mischungsverhältnis erreicht wurde. Es ist anzunehmen, dass dabei zeitweise *lokale Unterschiede* auftreten, die zu unterschiedlichen Messergebnissen führen. Als grobe Abschätzung hierfür dienen die im Vergleichszeitraum registrierten, kurzzeitigen Variationen der In-situ-Messdaten: ca. ± 1 %.

Prinzipiell ist also von gewissen Abweichungen während der Messdauer auszugehen. Ein signifikanter Unterschied zwischen den Mittelwerten der Messungen ist allerdings nicht zu erwarten.

Wasserdampf

Aus technischen Gründen wurde bei den Validierungsmessungen für Offline nicht die bzgl. Wasserdampf optimierte Wellenlänge von 1573,16 nm verwendet sondern 1572,77 nm. Da man sich hier auf der Flanke einer Wasserdampf-Linie befindet, sollte deren Einfluss betrachtet werden.

Gemäß der hauseigenen Wetterstation lag der Wasserdampfgehalt der Atmosphäre während der Validierungsmessungen bei maximal 9,5 g/m³. Der Simulation zufolge ergibt sich hierfür ein Fehler von 0,1 %, also deutlich unter 1 $\mu\text{mol/mol}$, was für die gezeigten Messungen damit ohne Bedeutung ist.

Häufig werden Spurengas-Mischungsverhältnisse auf trockene Luft bezogen. Der hier angegebene Wasserdampfgehalt führt zu einer Differenz von maximal 6 $\mu\text{mol/mol}$ zwischen den Werten der CO₂-Mischungsverhältnisse in trockener bzw. feuchter Luft. Da das In-situ-Vergleichsinstrument die entsprechende Korrektur nicht vornimmt, blieb auch die IPDA-Messung unkorrigiert, es handelt sich also bei den von beiden Messgeräten gewonnenen Werten konsistent um CO₂-Mischungsverhältnisse in feuchter Luft.

Detektor- und Vorverstärker-Rauschen

Durch den nötigen Einsatz der Streuscheiben in der Detektionsoptik geht viel des vom Teleskop eingesammelten Lichts verloren. Um ein genügend starkes Eingangssignal für den Digitizer zu erreichen, musste der Vorverstärker des Detektors auf eine sehr hohe Verstärkung eingestellt werden – mit dem Effekt eines relativ hohen Eigenrauschens. Die Signal-zu-Rausch-Verhältnisse lagen für die vier Einzelsignale pro Messwert bei den in Tabelle 4.2 angegebenen Werten.

Messsignal	SNR
P_{on}	8
P_{on}^{ref}	33
P_{off}	11
P_{off}^{ref}	37
Gesamt	6,25

Tabelle 4.2: Die für die Validierungsmessungen abgeschätzten SNR pro Messwert

Das erreichte SNR von 6,25 pro Messwert entspricht einem Fehler von 16% der gemessenen Transmission im Einzelschuss. Bei einer Mittelung über 3000 Werte (10 Minuten) reduziert sich dieser Fehler auf 0,3%. Für eine CO_2 -Bestimmung unter den Bedingungen der gezeigten In-situ-IPDA-Vergleichsmessungen ergibt sich daraus ein statistischer Fehler für das CO_2 -Mischungsverhältnis von 1,2 %, also etwa $5 \mu\text{mol/mol}$, was in guter Übereinstimmung mit den entsprechenden Simulationsrechnungen steht (s. Anhang D.1).

Entfernung zum Target

Die Simulation liefert für eine Entfernung von 2 km zwischen IPDA-System und Target einen Fehler von 0,05 % des CO_2 -Gehaltes pro Meter fehleingeschätzter Distanz. Der Digitalizer arbeitet mit einer Samplingrate von 400 MHz, was einem zeitlichen Auflösungsvermögen von 2,5 ns entspricht. Das bedeutet eine räumliche Auflösung von 0,4 m. Bei den vorliegenden Messungen ergibt sich durch das relativ geringe SNR und die Verbreiterung der Impulse aufgrund der Bandbreite des Detektor-Vorverstärkers eine Ungenauigkeit bei Festlegung der Zeitpunkte t_{Target} und t_{ref} der entsprechenden Impulse (s. Gleichung 2.22 in Abschn. 2.3.2). Es wird daher eine Unsicherheit bei der Bestimmung der Laufzeit von ca. 13 ns angenommen. Das führt zu einer Ungenauigkeit der Entfernung von etwa 4 m. Es ergibt sich daraus ein Fehler des ermittelten CO_2 -Mischungsverhältnisses von 0,2 %.

Fehler durch externe Größen

Zuletzt werden die Unsicherheiten der geräteunabhängigen Größen betrachtet. Dazu zählen die zur Auswertung der Messungen benötigten Daten aus HITRAN sowie die atmosphärischen Parameter Temperatur und Druck, ermittelt von der hauseigenen Wetterstation.

Das bei den Testmessungen verwendete In-situ-Vergleichsgerät liefert als Messgröße das CO_2 -Mischungsverhältnis. Da mit dem IPDA die für die Messung der CO_2 -Teilchendichte optimierte Linie verwendet wurde und nicht die optimale Linie für die Mischungsverhältnis-Bestimmung, liegt hier ein leicht erhöhter Fehler (vgl. Abschn. 2.4.1) durch die Temperaturunsicherheit vor.

Die Temperaturmessung der hauseigenen Wetterstation findet in unbebauter Umgebung am Rand des DLR-Geländes statt und entspricht damit in guter Näherung den Gegebenheiten entlang der Messtrecke. Es wird ein Fehler von ± 1 K angesetzt. Für die

Druckmessung wird ein Fehler von ± 1 hPa angenommen. Eine Zusammenstellung ist in Tabelle 4.3 gegeben.

Größe	Fehler der Größe	Fehler Mischungsverh.
Temperatur	± 1 K	0,3 %
Luftdruck	± 1 hPa	< 0,01 %
HITRAN-Parameter	4,7 %	5,5 %

Tabelle 4.3: *Unsicherheiten der externen Parameter und die daraus resultierende Messgenauigkeit*

Der konstante Bias aufgrund der Unsicherheit der HITRAN-Parameter kann bei zukünftigen Anwendungen durch den Einsatz entsprechender genauerer Daten deutlich reduziert werden (vgl. Abschn. 2.3.1). Durch eine entsprechende Kalibrierung durch ein anderes Messgerät kann er ebenfalls reduziert werden.

4.3 Ergebnisse

4.3.1 Nullmessungen

Die Ergebnisse der Nullmessungen definieren die Messgenauigkeit, die mit dem vorgestellten Aufbau maximal erreichbar ist. Sie sind das Ergebnis eines umfangreichen Optimierungsprozesses der Empfangsoptik.

Messung über kurze Distanz

In Abbildung 4.4 ist das Nullsignal in einer 43-minütigen Messung zu sehen, die über eine Distanz von 50 m durchgeführt wurde. Dargestellt ist die gemessene Transmission. Aufgrund der kurzen Strecke ist nur eine geringe CO₂-Absorption wirksam. Die erwartete Transmission beträgt 0,993.

Es wurde über 3000 Messwerte gemittelt, was einer Mitteldauer von 10 Minuten entspricht. Zu sehen ist ein Bias von 1 %. Die erkennbaren zeitlich variierenden Abweichungen lagen bei maximal 0,43%, ihre Standardabweichung vom Mittelwert beträgt 0,18%.

Um Vergleiche durchführen zu können, werden diese Abweichungen der Transmission auf die Messkonfiguration der gezeigten In-situ-IPDA-Vergleichsmessungen bezogen. Man erhält dann die Abweichungen in der Form eines „Pseudo-CO₂-Mischungsverhältnisses“. Hierfür ergibt sich also ein Bias von 5 % (ca. 20 $\mu\text{mol/mol}$) und zeitlich variierenden Abweichungen von maximal 2,3 % (ca. 9 $\mu\text{mol/mol}$) bei einer Standardabweichung von 1 % (ca. 4 $\mu\text{mol/mol}$).

Aufgrund der geringen Distanz zwischen Messgerät und Target waren hier die Messsignale stärker als bei den Messungen über lange Distanz. Daher ergibt sich ein besseres *SNR* und ein geringerer statistischer Fehler.

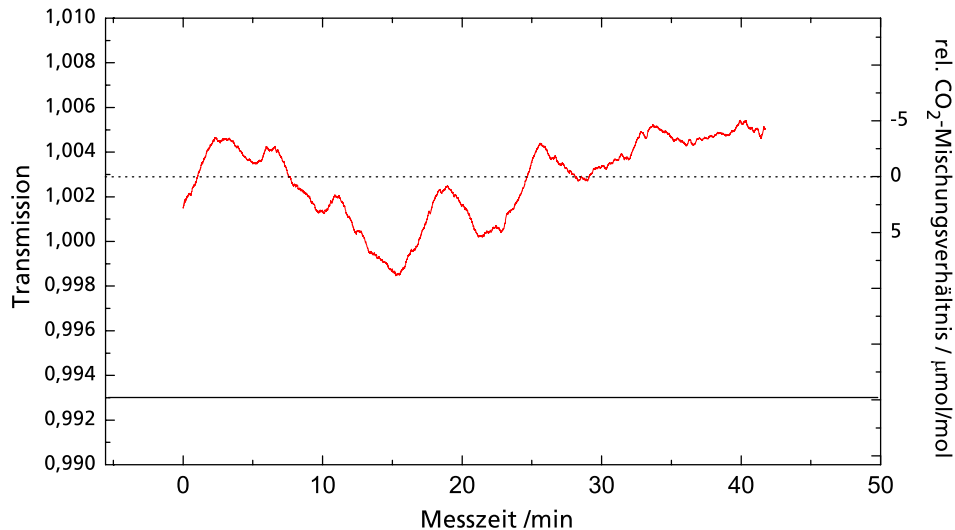


Abbildung 4.4: Nullmessung über kurze Distanz: Zeitverlauf der gemessenen Transmission mit Angabe der entsprechenden Abweichung des CO_2 -Mischungsverhältnisses relativ zum Mittelwert der Messung

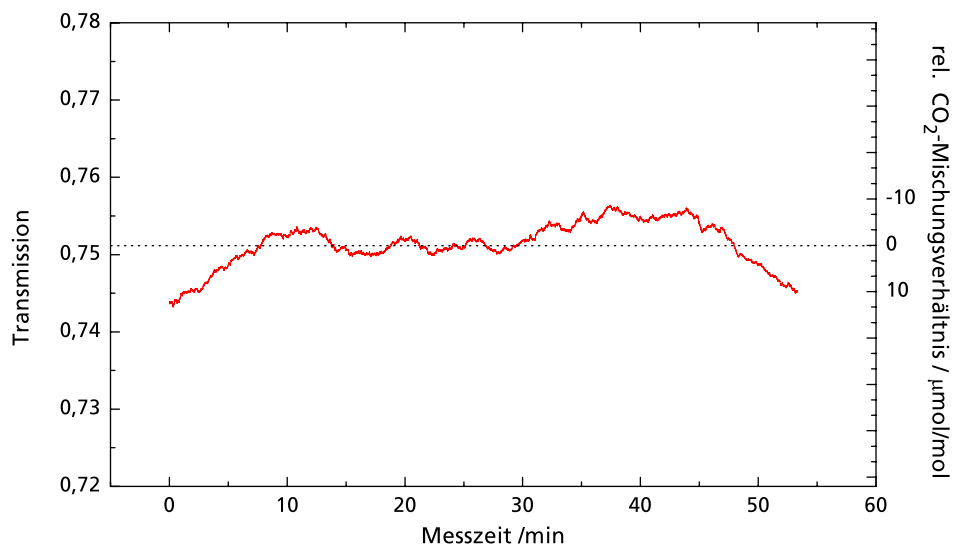


Abbildung 4.5: Nullmessung über lange Distanz: Zeitverlauf der gemessenen Transmission mit Angabe der entsprechenden Abweichung des CO_2 -Mischungsverhältnisses relativ zum Mittelwert der Messung

Messung über lange Distanz

Abbildung 4.5 zeigt das Nullsignal während einer Messung, die in der für die In-situ-Vergleichsmessungen eingesetzten Messkonfiguration stattfand. Sie erfolgte nachmittags mit einer Dauer von 53 Minuten. Man kann daher von einem nahezu konstanten CO_2 -Mischungsverhältnis während der Messung ausgehen.

Die Kurve zeigt eine Mittelung über 3000 Messwerte. Da keine simultane Messung mit einem Vergleichsgerät stattfand, kann kein Bias angegeben werden. Bezogen auf die gemessene Transmission liegen die zeitlich variierenden Abweichungen im Nullsignal bei

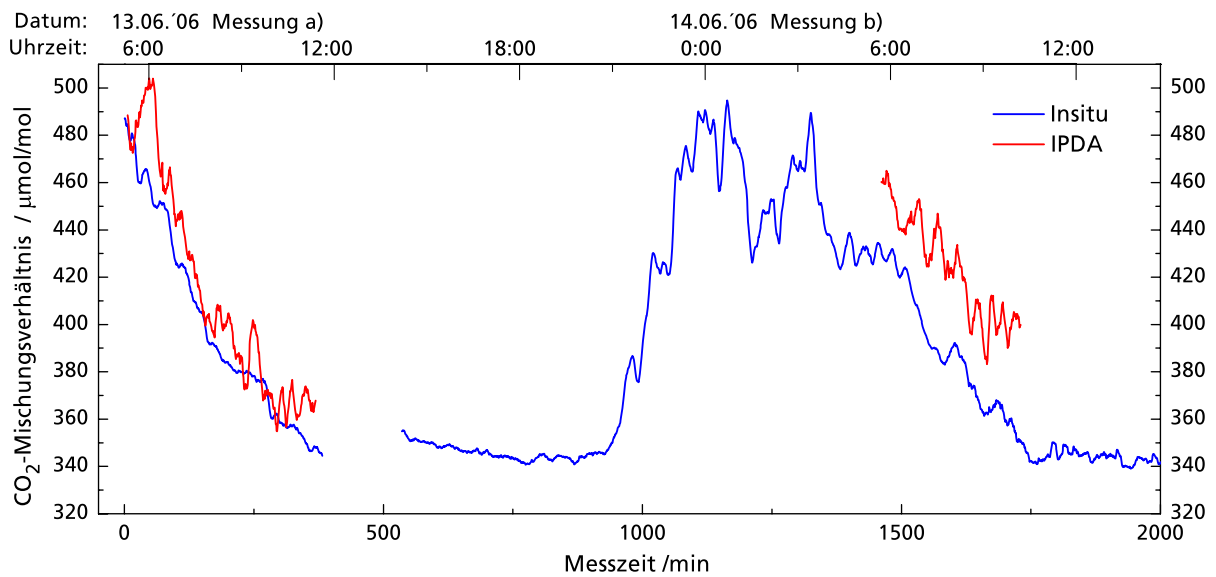


Abbildung 4.6: *In-situ-IPDA-Vergleichsmessungen des atmosphärischen CO₂-Mischungsverhältnisses an zwei aufeinanderfolgenden Tagen*

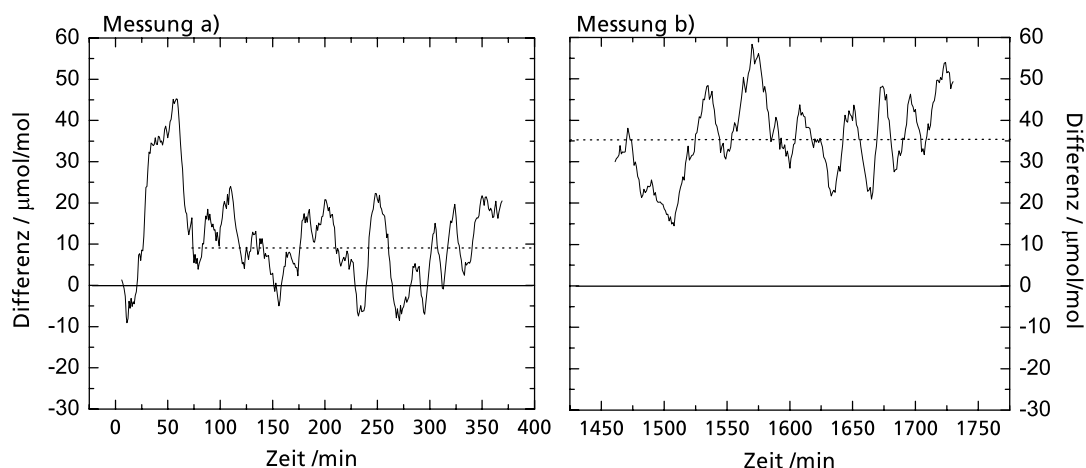


Abbildung 4.7: *Differenzen zwischen den ermittelten CO₂-Mischungsverhältnissen der In-situ- und IPDA-Messungen*

maximal 1,1 %, ihre Standardabweichung bei 0,4 %.

In der Form des Pseudo-CO₂-Mischungsverhältnisses entspricht das einer maximalen Abweichung von 3 % (ca. 12 µmol/mol). Die Standardabweichung beträgt 1,6 % (ca. 6 µmol/mol).

4.3.2 Vergleichsmessungen

Die Ergebnisse der oben beschriebenen simultanen IPDA- und In-situ-Messungen sind in Abbildung 4.6 dargestellt. Zu sehen ist der Verlauf des Kohlendioxid-Mischungsverhältnisses in Bodennähe über eine Dauer von 32 Stunden. Abbildung 4.7 zeigt die Differenzen zwischen der IPDA- und der In-situ-Messung. Es handelt sich bei allen Kurven um 10 Minuten-Mittel.

Die In-situ-Messungen zeigen am 13. und 14. Juni erwartungsgemäß einen starken Anstieg des CO₂-Mischungsverhältnisses während der Nacht. Das klare Frühsommerwetter führte zu ausgeprägten nächtlichen Bodeninversionen, was entsprechende Radiosondaufstiege bestätigen. Das CO₂ konnte sich in dieser stabilen, etwa 100 m dicken Schicht anreichern. Während der Nacht zeigten sich starke Schwankungen im Mischungsverhältnis. Nach Sonnenaufgang fiel es wieder auf einen vergleichsweise konstanten Tageswert.

Betrachtet man die IPDA-Messung, erkennt man gute Übereinstimmungen mit der In-situ-Messung. Bei der Messung a) tritt zu Beginn eine starke Abweichung von 45 $\mu\text{mol/mol}$ (10 %) auf, die als Ausreißer gesondert betrachtet wird und bei den folgenden Zahlen unberücksichtigt bleibt: Es liegt eine konstante Abweichung (Bias) von 9 $\mu\text{mol/mol}$ (2,2 %) vor und im Verlauf der Messung treten überlagerte Abweichungen von maximal 20 $\mu\text{mol/mol}$ (5 %) auf, die Standardabweichung beträgt dabei 8,5 $\mu\text{mol/mol}$ (2 %). Messung b) zeigt einen Bias von 36 $\mu\text{mol/mol}$ (9 %). Es gibt überlagerte zeitlich variierende Abweichungen von maximal 20 $\mu\text{mol/mol}$ (5 %) bei einer Standardabweichung von 8,6 $\mu\text{mol/mol}$ (2 %). Die Ergebnisse werden im nächsten Kapitel analysiert und bewertet.

Kapitel 5

Diskussion

5.1 Analyse der Validierungsmessungen

Bei der Betrachtung der Messkurven der In-situ-IPDA-Vergleichsmessungen (Abbildung 4.6) wird die Übereinstimmung bereits gut deutlich. Das aufgebaute Laborsystem erfasst die zeitliche Änderung des Kohlendioxid-Mischungsverhältnisses bezüglich Trend und Amplitude in gleicher Weise wie das In-situ-Vergleichsgerät.

Die dennoch auftretenden Abweichungen werden nun quantifiziert und mit den erwarteten Fehlern verglichen. Unter Zuhilfenahme der Nullmessungen soll auf ihre Ursachen geschlossen werden. Auf dieser Basis werden zudem Vorschläge für eine zukünftige Weiterentwicklung des Systems zusammengestellt.

Ermittelte Messfehler der Validierungsmessungen

In Tabelle 5.1 sind die jeweils aufgetretenen Messfehler der gezeigten Validierungsmessungen zusammengestellt.

	Bias	max. var. Abweichung	Standardabweichung
Nullmessung kurz	5 %	2,3 %	1 %
Nullmessung lang	–	3 %	1,6 %
Vergleichsmessung a)	2,2 %	5 % (10 % *)	2 %
Vergleichsmessung b)	9 %	5 %	2 %

Tabelle 5.1: *Messfehler der gezeigten Validierungsmessungen bzgl. der CO₂-Mischungsverhältnisse (Vergleichsmessungen) bzw. der Pseudo-CO₂-Mischungsverhältnisse (Nullmessungen)*

Es erfolgte eine Einteilung in einen konstanten Bias sowie in die überlagerten zeitlich variierenden Abweichungen (* Ausreißer zu Beginn der Messung).

Gibert et al. [27] sowie Koch et al. [26] führten jeweils mit DIAL-Systemen (Heterodynempfang, Messwellenlänge 2 μm) ähnliche CO₂-In-situ-Vergleichsmessungen durch. Sie berichten von Messgenauigkeiten, die in der gleichen Größenordnung wie die Genauigkeit des hier vorgestellten Systems liegen.

5.1.1 Betrachtung der Vergleichsmessungen

Die Übereinstimmung zwischen IPDA-System und In-situ-Gerät im Bereich einiger Prozent Genauigkeit ist für diesen ersten Laboraufbau in Anbetracht der gegebenen Voraussetzungen als hervorragend zu bewerten. Der entsprechende Abschnitt des Tagesganges wird vom IPDA-System sehr gut wiedergegeben. Insbesondere Messung a) zeigt über sechs Stunden hinweg keinen signifikanten Drift des Mittelwertes (s. Abb. 4.6). Beide IPDA-Messungen sind konsistent in Bezug auf ihre zeitlich variablen Abweichungen. Der Bias ist dagegen einmal schwach und einmal stark ausgeprägt. Die Schwankungen um den Mittelwert sind bei der IPDA-Messungen in ihrer Amplitude deutlich größer als bei der In-situ-Messung. Es ist davon auszugehen, dass die Abweichungen hauptsächlich vom IPDA-System hervorgerufen werden. Die Ursachen sollen im Folgenden herausgearbeitet werden.

Die Ergebnisse der Abschätzung der Messunsicherheiten, die während der In-situ-Vergleichsmessungen vorlagen (Abschn. 4.2.5), sind in Tabelle 5.2 zusammengefasst.

Ursache	max. Bias	max. var. Abweichung
Wellenlänge Online (DFB + OPO)	2 %	2 %
spektrale Reinheit	0,4 %	0,2 %
Entfernung	0,2 % *	–
Temperaturmessung	–	0,3 %
HITRAN	5,5 % *	–
In-situ-Messung	1,9 % *	2 %
lokale Unterschiede	–	1 %
statistischer Fehler	–	1,2 %
Gesamtfehler	6,2 %	3,25 %

Tabelle 5.2: Zusammenfassung der abgeschätzten Messunsicherheiten im CO_2 -Mischungsverhältnis der gezeigten Vergleichsmessungen

Als Gesamtfehler wurde die geometrische Summe der Einzelfehler angesetzt. Die mit (*) gekennzeichneten möglichen Bias-Quellen können den Bias-Unterschied zwischen Messung a) und b) prinzipiell nicht verursachen, da sie für beide Messungen gleichermaßen gelten. Man erkennt, dass der Bias-Unterschied zwischen Messung a) und b) mit keiner der übrigen Fehlerquellen erklärt werden kann.

Der statistische Fehler war aufgrund des schlechten Signal-Rausch-Verhältnisses durch den nötigen Einsatz der Streuscheiben in der Detektionsoptik relativ hoch und ist damit eine der Ursachen für die beobachteten zeitlich variierenden Abweichungen der Messergebnisse. Die inaktive Online-Stabilisierung sowie die manuelle Kontrolle der Resonator-Abstimmung können ebenfalls zu deutlichen Abweichungen beitragen. Aber auch bei konservativer Abschätzung können diese Faktoren die auftretenden Fehler nicht alleine verursacht haben.

Bezüglich des großen Ausreißers am Anfang von Messung a): Auch ein sehr starkes, unbeobachtetes Nachlassen der spektralen Reinheit kann für große positive Abweichun-

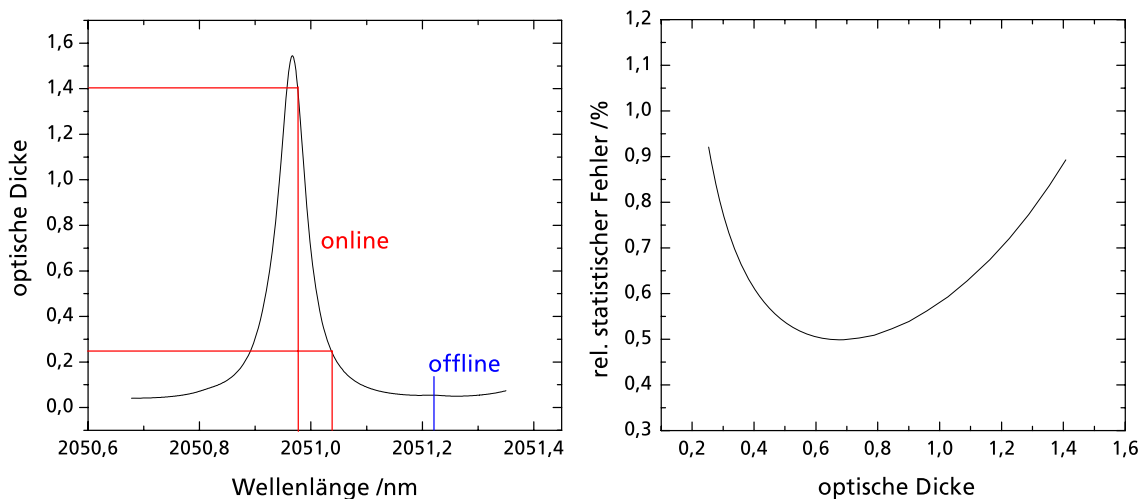


Abbildung 5.1: *Simulation des statistischen Fehlers in Abhängigkeit von der optischen Dicke; links: Variation der optischen Dicke (einfache Strecke) durch Variation der Online-Wellenlänge innerhalb des rot markierten Bereichs, rechts: resultierender statistischer Fehler (wobei die Parameter der In-situ-IPDA-Vergleichsmessungen verwendet wurden)*

gen nicht verantwortlich sein, da Derartiges stets zu Unterschätzungen des Mischungsverhältnisses führen würde. Entsprechendes gilt für ein unbemerkt starkes Abweichen der Online-Wellenlänge: Da in der Nähe des Linienmaximums gemessen wurde, kann bei einer Abweichung das Mischungsverhältnis nicht derart stark überschätzt werden.

Es muss daher festgestellt werden, dass die beobachteten Messfehler nicht vollständig durch die bisher betrachteten Fehlerquellen erklärbar sind.

Statistischer Fehler bei optimierter optischer Dicke

Aufgrund der relativ kurzen Messstrecke lag bei den gezeigten In-situ-IPDA-Vergleichsmessungen nur eine geringe optische Dicke von 0,14 (einfache Strecke) vor. Das ist neben dem Einsatz der Streuscheiben ein Grund für den vergleichsweise hohen relativen statistischen Fehler des CO_2 -Mischungsverhältnisses von 1,2 %. Wie schon in Abschnitt 2.2.1 angedeutet wurde, ist der Fehler bei einer bestimmten optischen Dicke minimal.

Um den Effekt zu demonstrieren, soll anhand einer Simulation gezeigt werden, welcher statistische Fehler für den Fall der gezeigten Messungen bei der Verwendung einer an die Messstrecke angepassten, stärkeren Absorptionslinie erreichbar wäre. Behält man bis auf die Messwellenlängen alle Parameter bei, die bei den gezeigten Messungen vorlagen, ergibt sich der in Abbildung 5.1 gezeigte relative statistische Fehler. Als Beispiel dient eine Linie der $2,05 \mu\text{m}$ -Bande. Ein minimaler Fehler wird bei einer optischen Dicke von 0,67 erreicht.

Durch eine optimierte optische Dicke, die hier bei einer Online-Wellenlänge von 2051,00 nm erreicht wird, ließe sich der statistische Fehler in diesem Fall auf 0,5 %, also um mehr als die Hälfte reduzieren.

5.1.2 Betrachtung der Nullmessungen

Da bei der Nullmessung über kurze Distanz (Methode a)) eine robuste Konfiguration vorlag, bei der die spektralen Eigenschaften der Messstrahlung irrelevant sind und die Probleme bei der Abbildung auf den Detektor auf ein Minimum reduziert sein müssten, wird ein bis auf das statistische Rauschen fehlerfreies Nullsignal erwartet. Die dennoch registrierten Abweichungen führen zu der Hypothese, dass bei der Leistungsreferenzmessung Abweichungen auftreten, die wiederum vermutlich auf Schwankungen der Online- und Offline-Strahlprofile beruhen, also auf eine unzureichende räumliche Strahlqualität zurückzuführen sind.

Falls das zutrifft, kann der größere Fehler bei den Nullmessungen gemäß Methode b) dadurch erklärt werden, dass die dabei eingesetzte komplexere Optik die Problematik verstärkt. Ein weiterer Einfluss an dieser Stelle ist durch das schlechtere Signal-Rausch-Verhältnis gegeben, was aber nicht die einzige Ursache sein kann.

Der höhere Fehler bei den In-situ-IPDA-Vergleichsmessungen im Vergleich zur Nullmessung gemäß Methode b) kann dadurch erklärt werden, dass die Messungen deutlich länger dauerten und daher auch Schwankungen sichtbar wurden, die auf längeren Zeitskalen stattfanden. Vergleicht man die Messungen jeweils auf gleichen Zeitskalen, stimmt die Größe der Abweichungen in etwa überein.

Die durchgeführten Nullmessungen haben sich als wertvolles Mittel bei der Systemoptimierung herausgestellt.

5.1.3 Schlussfolgerungen

Die Analysen haben gezeigt, dass das aufgebaute System sehr gut geeignet ist, um Variationen des atmosphärischen CO₂-Gehaltes in Bodennähe zu messen. Des Weiteren konnten die auftretenden Messfehler teilweise durch die ermittelten Eigenschaften der Systemkomponenten erklärt werden. Allerdings zeigt sich auch, dass es mehr systembedingte Fehlerquellen geben muss als die bereits erfassten. Insbesondere die auffälligsten Abweichungen, also der große Bias von Messung b) und der Ausreißer bei Messung a) sowie die Abweichungen bei den Nullmessungen, können durch die behandelten Fehlerquellen nicht erklärt werden.

Einige Hypothesen, deren Überprüfung eine Aufgabe für die Zukunft bleibt, können jedoch bereits aufgestellt werden. Die Erfahrungen bei der Konfiguration der Detektionsoptik sprechen dafür, dass es sich dabei um eine äußerst kritische Komponente des Systems handelt. Ohne den Einsatz der Streuscheiben konnte kein ausreichend stabiles Messsignal erreicht werden. In Abschnitt 2.3.2 wurde gezeigt, dass die Messergebnisse eine sehr große Empfindlichkeit gegenüber Ungenauigkeiten bei der Leistungsreferenzmessung aufweisen. Reproduzierbare Beobachtungen führen zu der Annahme, dass die vorliegende inhomogene räumliche Intensitätsverteilung der Messstrahlung in Kombination mit einer nicht optimal angepassten Optik die bisher nicht erklärbaren Messfehler verursacht. Damit lassen sich sowohl ein Bias als auch als variable Abweichungen erklären. Da im Rahmen der Untersuchungen kein passendes Strahlanalyse-System zur Verfügung stand, konnte die Korrelation nicht eindeutig nachgewiesen werden. Die Hinweise auf einen

Zusammenhang basieren auf Beobachtungen anhand der eingesetzten IR-Sensor-Karten. Eventuell ist auch der von der Optik erfasste Raumwinkel zu klein bzw. die Divergenz des Messstrahls zu groß, um den gesamten Laserspot zu erfassen. Eine Ursache für eine unzureichende räumliche Strahlqualität kann beispielsweise der gemessene Doppelumlauf des OPO sein (siehe Abschnitt 3.3.1). Das zeitlich instabile Verhalten des verwendeten Pumpasers kommt als zusätzliche Fehlerursache in Frage, da OPO-Systeme auf eine sehr gute Strahlqualität des Pumpasers angewiesen sind [81].

Die Richtigkeit der Hypothese, dass *inhomogene Targets* (bzw. eine inhomogene Reflektivität) bei schlechter räumlicher Strahlqualität erhebliche Messfehler verursachen, konnte auf Basis der gewonnenen Daten dagegen nicht nachgewiesen werden. Wie die verschiedenen Nullmessungen zeigen, ist bei Verwendung eines topografischen Targets im Vergleich zu einem definierten, homogenen Target keine dramatische Fehlerzunahme festzustellen. Es ist davon auszugehen, dass die dabei beobachtete Fehlerzunahme hauptsächlich auf die höhere Anforderung an die Präzision der Abbildung bzw. Leistungs-Referenzmessung zurückzuführen ist.

5.2 Bewertung des Messaufbaus

Tabelle 5.3 zeigt einen Vergleich zwischen den geforderten (s. Abschn. 2.4.3) und in Testmessungen erreichten Genauigkeiten wichtiger Systemparameter (Abschn. 3.3.2) – für zwei exemplarische Messkonfigurationen.

Systemparameter	gefordert (horizontal)	gefordert (vertikal, 10 km)	erreicht
Jitter, Seeder Online (1σ)	< 100 MHz	< 50 MHz	5 MHz
Offset, Seeder Online	< 70 MHz	< 35 MHz	< 60 MHz *
Genauigkeit Seeder Offline	< 2 GHz	< 3 GHz	< 1,3 GHz
Impulsenergie	5-10 mJ	5-10 mJ	5-10 mJ
spektrale Reinheit OPO	$\geq 99,9\%$	$\geq 99,9\%$	99,9 %

Tabelle 5.3: Vergleich zwischen den geforderten (Messung in horizontaler Richtung bzw. in vertikaler Richtung von oben nach unten) und erreichten Eigenschaften wichtiger Systemparameter; * durch eine präzise Bestimmung des Druckshifts kann diese Ungenauigkeit deutlich reduziert werden

Die Messungen zeigen, dass das System zentrale Anforderungen erfüllt. Gerade die spektralen Eigenschaften der Laserlichtquelle sind wesentlich für diese Messmethode. Es folgen einige Anmerkungen bezüglich einzelner Aspekte des Aufbaus.

Die gezeigte **Heterodyn-Messung** kann bei einem zukünftigen Ausbau des Systems die tatsächlich erreichte Genauigkeit und die spektrale Breite der OPO-Ausgangsstrahlung

aufzeigen, weitere wichtige Parameter für eine präzise Messung. Sie kann zudem die Regelgröße für ein automatisches Cavity-Kontroll-System liefern. Die mit dem hier beschriebenen Aufbau erzeugten OPO-Impulse sind mit 5 ns Länge für eine derartige Messung allerdings sehr kurz. Daher sind der Messung enge Grenzen gesetzt. Schwebungs-Frequenzen von über einem GHz können von den zur Verfügung stehenden Messgeräten nicht erfasst werden und Frequenzen unter etwa 400 MHz können innerhalb des OPO-Impulses nicht aufgelöst werden. Idealer wäre daher – neben OPO-Impulsen mit etwa 10 ns Länge – der Einsatz eines Akusto-Optischen-Modulators (AOM), der die Seedlaser-Wellenlänge für diese Messung um einen definierten Betrag verschiebt. Hierbei würde bei absoluter Gleichheit der Seeder- und OPO-Wellenlängen die gemessene Schwebungsfrequenz exakt der Verschiebungsfrequenz entsprechen. Wird diese in den gut messbaren Bereich gesetzt, ist eine Messung mit hoher Präzision möglich. Des Weiteren erhält man so auch das Vorzeichen der Wellenlängendifferenz, was für ein automatisches Cavity-Kontroll-System von Vorteil ist.

Der verwendete **Pumplaser** ist aufgrund seiner Eigenschaften prinzipiell geeignet für diese Anwendung. Wenig optimal ist allerdings die vergleichsweise geringe Impulsrate von 10 Hz, die zu langen Mittelungszeiten führt. Für ein stationäres Laborsystem bedeutet das jedoch keine großen Nachteile. Problematisch hingegen ist die beobachtete Tendenz dieses blitzlampen-gepumpten Lasers, die nötige Stabilität bezüglich Schmalbandigkeit und Strahlqualität nicht über viele Stunden hinweg liefern zu können. Da das Pumplasersystem jedoch jederzeit ohne größere Anpassungen durch ein anderes Nd-YAG-System ersetzt werden kann, wurde dieser Laser dennoch für diese erste Stufe des Laboraufbaus gewählt.

Der aufgebaute **OPO** liefert geeignete Wellenlängen für die Messung von CO₂. Seine Ausgangsleistung und die spektrale Reinheit sind für die vorgesehene Anwendung gut geeignet. Das Konversionsprofil ist mit 0,2 nm voller Halbwertsbreite breiter als der Abstand der beiden benötigten Wellenlängen zueinander. Daher ist es möglich, mittels alternierendem Injection Seeding zweier Resonatormoden die Online- und Offline-Wellenlängen zu erzeugen. Auch die Möglichkeit, eine Feinabstimmung des Konversionsprofils auf die beiden benötigten Wellenlängen mittels nicht-kollinearer Phasen Anpassung und durch Variation der Temperatur durchzuführen, macht das verwendete OPO-Konzept zu einer hervorragend geeigneten Methode der Messwellenlängen-Erzeugung. Wellenlängen außerhalb des gezeigten Abstimmereichs lassen sich durch die Anwendung der kritischen Phasen Anpassung erreichen. Bei einem zukünftigen Ausbau des Systems kann die vorhandene Ansteuerung des integrierten Piezoelements zur Abstimmung der Resonatorlänge leicht in ein automatisches System zur Resonator-Stabilisierung („Cavity-Kontroll-System“) integriert werden. Die erreichte räumliche Strahlqualität stellt sich jedoch als Nachteil der vorgestellten Konfiguration dar.

Insgesamt erweist sich das Pumplaser-OPO-Konzept mit Injection Seeding aufgrund des großen Durchstimmereichs, der erreichbaren spektralen Eigenschaften, und der Möglichkeit der Erzeugung zweier schmalbandiger Wellenlängen als äußerst vielversprechend für ein CO₂-Messsystem mit hoher Genauigkeit.

5.3 Vorschläge für die Weiterentwicklung

Für einen zukünftigen Ausbau des Messsystems können einige Verbesserungen des bestehenden Systems vorgenommen werden, durch die sich eine deutliche Erhöhung der Messgenauigkeit erreichen lässt.

Als Pumplaser sollte ein bezüglich räumlicher und spektraler Strahlqualität stabileres System eingesetzt werden – beispielsweise ein diodengepumpter Nd:YAG-Laser. Zur Anpassung des Pumplaser-Strahldurchmessers sollte anstatt der Blende ein Teleskop verwendet werden, um Beugungseffekte zu vermeiden. Zur vollen Nutzung der bereits erreichten Stabilität der Seedlaser muss die realisierte Regelungs-Software mit der Datenerfassungs-Software für einen Parallelbetrieb kombiniert werden. Der bereits erfolgreich getestete Messaufbau zur Bestimmung von Wellenlängendifferenzen zwischen Seedlaser und OPO (Heterodyn-Messung) sollte in das System integriert werden, um die erzeugten Ausgangswellenlängen und ihre spektrale Breite präzise bestimmen zu können. Die Heterodyn-Signale sollten für ein automatisches Cavity-Kontrollsystem genutzt werden, um Wellenlängendifferenzen zu vermeiden und die definierten Messwellenlängen garantieren zu können. Eine Erweiterung um eine automatische Erfassung der spektralen Reinheit der erzeugten Strahlung liefert parallel zu den Messdaten eine Information über ihre Qualität. Das vermutete Problem der instabilen Leistungs-Referenzmessung sollte mit einem Strahlanalyse-System systematisch untersucht werden. Auf dieser Basis sollten eine weitere Optimierung der Detektionsoptik (möglichst ohne Leistungsverluste durch Streuscheiben) sowie eine Optimierung der räumlichen Strahlqualität des OPO durchgeführt werden. Es ist denkbar, dass die erforderliche räumliche Strahlqualität von einem OPO-System in der hier verwendeten Konfiguration auch nach einer Optimierung nicht erreicht werden kann. Weiterentwickelte OPO-Konfigurationen, wie z.B. OPO-OPA-Kombinationen, stellen allerdings eine vielversprechende Alternative dar.

Abgesehen von den technischen Aspekten sind weitere experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Nutzung der IPDA-Methode für präzise CO₂-Messungen nötig. In der Literatur findet sich zu wenig Information über die Reflektivität von topografischen Targets. Insbesondere spektral und räumlich hochaufgelöste Daten fehlen. Zudem gibt es wenig Erkenntnisse über die Auswirkung von Reflektivitäts-Sprüngen, die sich für bewegte Messplattformen ergeben. Des Weiteren sind nähere Untersuchungen bezüglich der Auswirkung räumlich aufgefächerter Targets auf die Entfernungsbestimmung nötig. Eine deutlich höhere Genauigkeit der CO₂-Linienparameter gegenüber den hier verwendeten ist eine weitere Voraussetzung für eine hohe Messgenauigkeit.

Kapitel 6

Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein Laborsystem zur Fernerkundung von atmosphärischem Kohlendioxid auf Basis der Differential-Absorptions-Lidar-Technik entwickelt. Als Strahlquelle wurde dabei, erstmals für CO₂-Messungen, ein Nd:YAG-gepumpter optisch parametrischer Oszillator bei 1,57 μm aufgebaut. Mit diesem Prototypen wurde die tageszeitliche Veränderung des CO₂-Mischungsverhältnisses erfolgreich gemessen. Die Ergebnisse wurden mit den Daten eines In-situ-Sensors verglichen.

Im ersten Schritt wurde die Messmethode anhand von numerischen Simulationen theoretisch untersucht. Mit Sensitivitätsanalysen wurden kritische Parameter herausgearbeitet, die die Messgenauigkeit limitieren. Dazu zählen insbesondere: Die Stärke der Absorptionslinie, die Temperatur- und Druckabhängigkeit der Absorptionslinie, die Wasserdampf-Querempfindlichkeit, die Parameter zur Berechnung des differentiellen Absorptionsquerschnittes, die Genauigkeit der Leistungsreferenz-Messung, die Empfindlichkeit des Detektors und die spektralen Eigenschaften der Laserstrahlung, hierbei insbesondere die Wellenlängenstabilität und die spektrale Reinheit. Es zeigte sich, dass im Hinblick auf diese Aspekte eine Messgenauigkeit im Subprozent-Bereich prinzipiell erreichbar ist.

In den Absorptionsbanden bei 1,57 μm und 1,6 μm konnten mehrere Messwellenlängen mit ausreichenden Absorptionsquerschnitten identifiziert werden, die weitestgehend temperaturunempfindlich sind und eine geringe Querempfindlichkeit zu Wasserdampf aufweisen. Der hieraus resultierende systematische Messfehler liegt bei unter 0,1 %. Die Simulation des statistischen Fehlers, verursacht durch das Detektor- und Vorverstärkerrauschen, ergab, dass das IPDA-Prinzip aufgrund der Nutzung des Target-Reflexes eine hohe Signalstärke und damit eine hohe Messempfindlichkeit ermöglicht, bei gleichzeitig moderaten Anforderungen an die Laserleistung und das Empfangssystem. Bei einer Laserausgangsleistung von 10 mJ pro Impuls, einem Teleskopdurchmesser von 20 cm und der Verwendung einer kommerziell erhältlichen PIN-Diode oder APD als Detektor ist ein statistischer Fehler von unter 0,1 % erreichbar. Weitere Simulationen ergaben folgende Anforderungen an die Laserlichtquelle: Für die Online-Wellenlänge ist je nach Messkonfiguration eine Stabilität im Bereich von 50 bis 100 MHz bei einer Wellenlängengenauigkeit von 35 bis 70 MHz zu erreichen. Die spektrale Reinheit der Laserstrahlung sollte bei $\geq 99,9\%$ liegen.

Im zweiten Schritt erfolgten experimentelle Untersuchungen zur Realisierung der Mess-

methode. Der entwickelte Laborprototyp besitzt als Laserlichtquelle ein Nd:YAG-gepumptes KTP-OPO-System, das mittels alternierendem Injection Seeding durch zwei DFB-Laserdioden zwei äußerst schmalbandige Wellenlängen bei $1,57 \mu\text{m}$ liefert. Es wurde eine präzise Wellenlängenstabilisierung mittels einer CO_2 -gefüllten Multipass-Absorptionszelle realisiert, die eine Online-Seedlaser-Stabilität von besser als 5 MHz bei einem Offset von unter 60 MHz ermöglicht. Des Weiteren wurde mittels einer weiteren Multipass-Absorptionszelle ein System zur Bestimmung der spektralen Reinheit der erzeugten Laserstrahlung aufgebaut, mit dem spektrale Reinheiten von über 99,9 % nachgewiesen werden können. Die Laserlichtquelle erreichte eine maximale spektrale Reinheit von 99,9 %. Der aus diesen Faktoren resultierende Messfehler liegt bei unter 0,3 %. Für ein vollständiges, einsatzfähiges Messsystem wurden des Weiteren eine computergestützte Steuerung und Datenerfassung aufgebaut sowie eine Sende-/Empfangsoptik mit Leistungsreferenz-Messung. Bei ersten Messversuchen traten erhebliche Instabilitäten im Messsignal auf, die variierenden Abweichungen im CO_2 -Mischungsverhältnis von bis zu 11 % (1σ) bei einem Bias von 30 % entsprachen. Es zeigte sich, dass die Auslegung der Detektionsoptik ein äußerst kritisches Element des Systems darstellt. Daher musste die Optik in einem umfangreichen Prozess optimiert werden. Anhand von speziellen Nullmessungen konnten die Instabilitäten des Systems quantifiziert werden. Nach der Optimierung wurde ein deutlich stabileres Nullsignal erreicht. Die verbleibenden Abweichungen lagen bei 1 % (1σ) im CO_2 -Mischungsverhältnis, was als Grenze für die erreichbare Genauigkeit des beschriebenen Laboraufbaus anzusehen ist.

In Testmessungen wurden Teile des atmosphärischen CO_2 -Tagesganges simultan mit dem IPDA-Prototypen und einem In-situ-Gerät gemessen. Dabei wurden tageszeitabhängige Amplituden im Mischungsverhältnis von $> 100 \mu\text{mol/mol}$ quantifiziert, die während der Auflösung von nächtlichen Bodeninversionen auftraten, in denen sich Kohlendioxid mit nahezu $500 \mu\text{mol/mol}$ angesammelt hatte. Definiert man die In-situ-Messung als Referenz, ergaben sich zeitlich variierende Abweichungen von 2 % (1σ), die einem Bias von 2 % bzw. 9 % überlagert waren. Das sind für diesen von Grund auf neu aufgebauten, bisher einzigartigen Prototypen beachtliche Ergebnisse.

Es wurde eine umfangreiche Fehleranalyse der Messergebnisse durchgeführt. Dazu wurde zunächst die zu erwartende Messgenauigkeit abgeschätzt, was anhand der numerischen Simulationen unter Berücksichtigung der Parameter erfolgte, die bei diesen Messungen vorlagen. Diese Abschätzung wurde mit den beobachteten Abweichungen verglichen. Es zeigte sich, dass die Differenzen zwischen IPDA-System und In-situ-Messung nicht vollständig durch die bisher erfassten Fehlerquellen erklärt werden können. Vieles spricht dafür, dass die für die IPDA-Methode neu eingeführte Leistungsreferenz-Messung in Kombination mit einer unzureichenden räumlichen Strahlqualität Instabilitäten im Messsignal hervorruft. Das konnte allerdings nicht mehr explizit untersucht werden, da kein Strahlanalysesystem zur Verfügung stand. Bei der zukünftigen Weiterentwicklung der Methode sollten diese Punkte besonders beachtet werden.

Zusammenfassend betrachtet, konnten im Rahmen dieser Arbeit keine Aspekte der Methode identifiziert werden, die dem Erreichen der geforderten Messgenauigkeit prinzipiell entgegenstehen. Der Einsatz eines DFB-Laser-geseedeten OPO-Systems als La-

serlichtquelle hat sich insbesondere durch die Durchstimmbarkeit, die Möglichkeit der Erzeugung zweier schmalbandiger Wellenlängen und durch die guten spektralen Eigenschaften ausgezeichnet. Für eine bessere räumliche Strahlqualität sind weiterentwickelte OPO-Methoden, wie z.B. OPO-OPA-Kombinationen, vielversprechend. Damit dient diese Arbeit als Grundlage für die Entwicklung eines aktiven CO₂-Sensors mit hoher Messgenauigkeit.

Zum gegenwärtigen Zeitpunkt ist die IPDA-Methode für den Zweck präziser CO₂-Messungen allerdings noch nicht in allen Details theoretisch und experimentell erforscht. So gibt es derzeit wenige Erkenntnisse über die Wirkung von räumlich strukturierten Targets, über die Wellenlängenabhängigkeit topografischer Targets sowie über die Limitierung der Messgenauigkeit aufgrund der variierenden Bodenreflektivität bei Flugzeug oder Satelliten getragenen Messsystemen. Für weitergehende Untersuchungen ist die Entwicklung einer äußerst präzisen Laserlichtquelle eine bestehende Herausforderung.

Beim letzten Call für „Earth Explorer Ideas“ der ESA (2006) wurde das Projekt A-Scope („Advanced Space Carbon and Climate Observation of Planet Earth“) ausgewählt, bei dem es insbesondere um die Messung von Kohlendioxid mittels Satelliten getragener Systeme geht, wodurch die Aktualität weiterer Forschungsaktivitäten in diesem Bereich betont wird.

Anhang

A. Übersicht über den aktuellen Stand der Entwicklung aktiver Messsysteme

Die Entwicklung aktiver Fernerkundungs-Systeme zur Messung atmosphärischen Kohlendioxids steht derzeit erst am Beginn. Folgende Institute entwickeln entsprechende Systeme (Stand: Juli 2006):

Institution	Wellenlänge	Transmitter	Receiver	aktueller Stand	Quellen
NASA JPL	2 μm	cw	heterodyn	Testmessungen	[29, 31]
NASA GSFC	1,57 μm	cw	direkt	Testmessungen	[30, 32]
NASA Langley	2 μm	gepulst	heterodyn	Testmessungen	[26]
NASA Langley	2 μm	gepulst	direkt	in Entwicklung	[28]
LMD (Frankreich)	2 μm	gepulst	heterodyn	Testmessungen	[27, 33]
MRI (Japan)	1,57 μm	gepulst	direkt	Beginn der Entwicklung	[34]

Keiner der Prototypen erreicht bislang die geforderte Messgenauigkeit im Subprozent-Bereich. Zur Erläuterung der genannten Begriffe:

Transmitter: Die Laserstrahlung wird entweder gepulst abgegeben oder kontinuierlich (cw, „continuous wave“).

Receiver: Das Empfangssystem arbeitet entweder nach dem Prinzip des *Direktempfangs*, d.h. es wird die zurück gestreute Intensität gemessen, oder es handelt sich um einen *Heterodynempfang* (Überlagerungsempfang), bei dem das empfangene Licht mit einem Lokaloszillator überlagert wird [96].

B. Spektren von CO_2 und Wasserdampf im nahen Infrarot

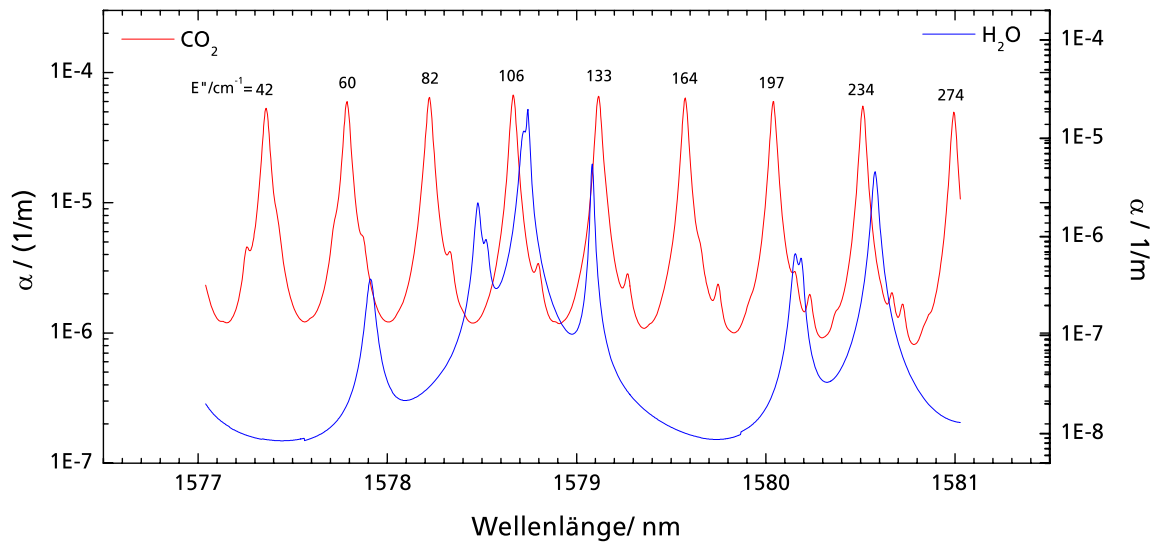


Abbildung 1: Extinktionskoeffizienten für CO_2 und H_2O für die Absorptionsbande bei 1579 nm

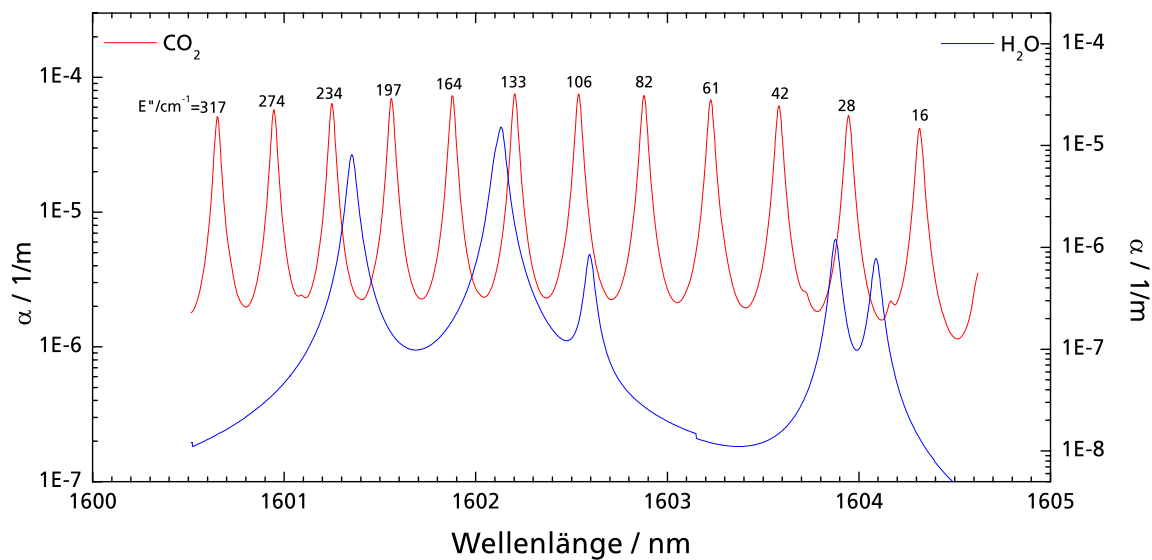


Abbildung 2: Extinktionskoeffizienten für CO_2 und H_2O für die Absorptionsbande bei 1602 nm

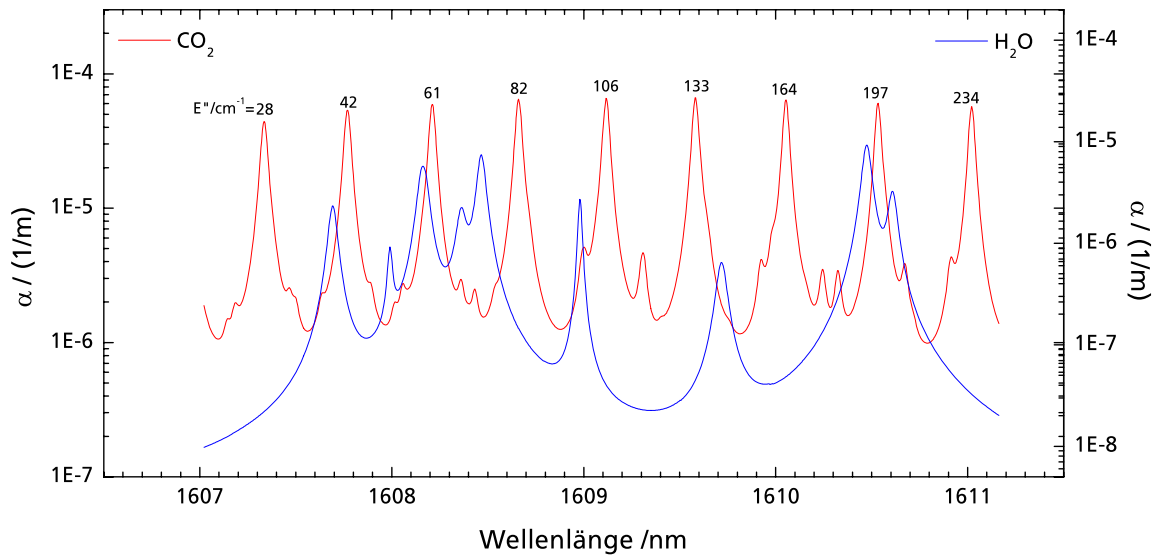


Abbildung 3: Extinktionskoeffizienten für CO_2 und H_2O für die Absorptionsbande bei 1609 nm

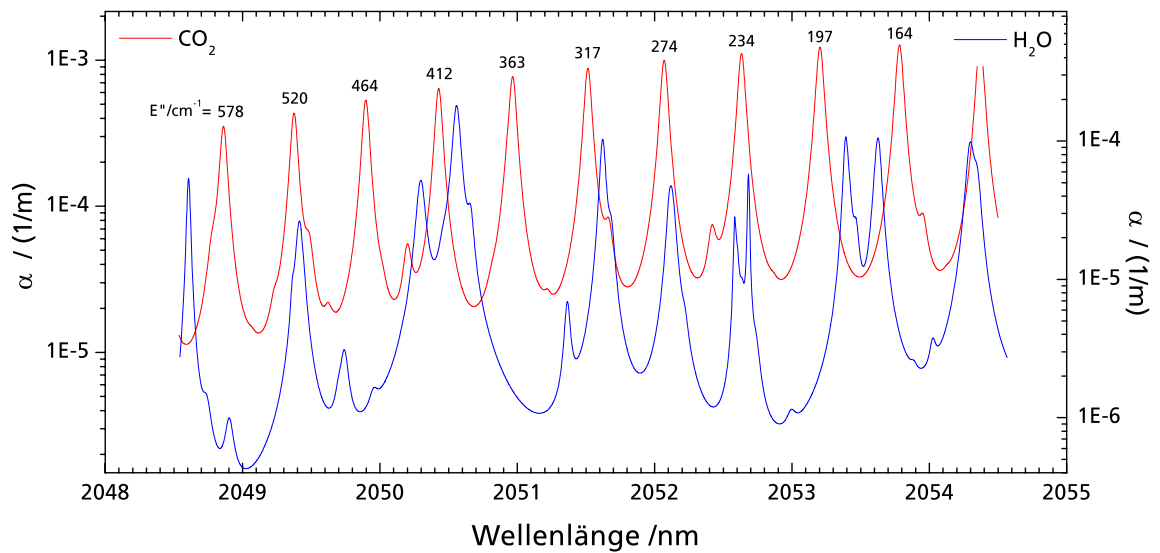


Abbildung 4: Extinktionskoeffizienten für CO_2 und H_2O für die Absorptionsbande bei 2050 nm

C. Optimierte systematische Fehler ausgewählter Messwellenlängen

online	offline	E'' /cm ⁻¹	Fehler der Teilchendichte	Fehler des Mischungs- verhältnisses
1573,3315 nm	1573,23 nm	43	0,02 %	0,4 %
1572,9935 nm	1573,16 nm	61	0,01 %	0,3 %
1572,6596 nm	1572,82 nm	80	0,1 %	0,3 %
1572,3350 nm	1572,37 nm	106	0,2 %	0,2 %
1571,1110 nm	1571,29 nm	234	0,4 %	< 0,01 %
1570,8235 nm	1571,02 nm	274	0,4 %	0,1 %
1577,3594 nm	1577,46 nm	43	0,02 %	0,4 %
1580,9932 nm	1581,10 nm	274	0,4 %	0,06 %
1603,5824 nm	1603,48 nm	43	0,02 %	0,4 %
1603,2264 nm	1603,32 nm	60	0,02 %	0,3 %
1602,8780 nm	1603,00 nm	80	0,05 %	0,3 %
1601,5598 nm	1601,65 nm	197	0,3 %	0,1 %
1600,9464 nm	1600,84 nm	274	0,4 %	0,06 %
1608,6603 nm	1608,93 nm	80	0,06 %	0,3 %
1611,0203 nm	1611,12 nm	234	0,4 %	0,02 %
1611,5154 nm	1611,61 nm	274	0,4 %	0,04 %
2051,0296 nm	2051,22 nm	363	0,1 %	0,3 %
2048,9392 nm	2049,15 nm	578	0,5 %	0,1 %

Tabelle 1: Resultierende systematische Auswertungsfehler aufgrund einer Unsicherheit im angenommenen Temperaturprofil von 1 K für daraufhin optimierte Online- und Offline-Messwellenlängen-Paare

online	offline	E'' / cm^{-1}	syst. Fehler aufgrund H_2O -Interferenz
1573,3315 nm	1573,23 nm	43	4,1 %
1572,9935 nm	1573,16 nm	60	0,02 %
1572,6596 nm	1572,82 nm	80	2,4 %
1572,3350 nm	1572,37 nm	106	< 0,01 %
1571,1110 nm	1571,29 nm	234	0,02 %
1570,8235 nm	1571,02 nm	274	0,01 %
1577,3594 nm	1577,46 nm	43	< 0,01 %
1580,9932 nm	1581,10 nm	274	< 0,01 %
1603,5824 nm	1603,48 nm	43	0,02 %
1603,2264 nm	1603,32 nm	60	< 0,01 %
1602,8780 nm	1603,00 nm	80	0,04 %
1601,5598 nm	1601,65 nm	197	0,2 %
1600,9464 nm	1600,84 nm	274	0,1 %
1608,6603 nm	1608,93 nm	80	< 0,01 %
1611,0203 nm	1611,12 nm	234	0,1 %
1611,5154 nm	1611,61 nm	274	0,04 %
2051,0296 nm	2051,22 nm	363	0,05 %
2048,9392 nm	2049,15 nm	578	0,3 %

Tabelle 2: Resultierende systematische Auswertungsfehler aufgrund der zusätzlichen Absorption durch Wasserdampf bei Annahme eines unberücksichtigten tropischen Wasserdampfgehaltes der Atmosphäre [60]; bei den angegebenen Messwellenlängen-Paaren handelt es sich um die bzgl. der Temperaturempfindlichkeit optimierten Wellenlängen

D. Weitere Ergebnisse der Simulation des statistischen Fehlers

D.1 Aufgebautes Laborsystem

Für die Simulation des statistischen Fehlers des im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten Laborsystems wurden folgende Parameter verwendet:

Wellenlänge	on: 1572,9918 nm off: 1572,77 nm
Laser	
Energie	6 bis 8 mJ/Impuls
Impulsrate	10 Hz
Target	
Reflektivität	20 bis 30 %
Auffächerung	5 m
Empfänger	
Teleskop-Durchmesser	15 cm
Transmission der Optik	0,01 mit Streuscheibe
Filter-Transmission	0,7
Bandbreite	2 MHz
Detektor	PIN (Hamamatsu G8605-11)
Mittelung	3000 Messwerte (10 min)

Der Unterschied zur Simulation, die in Abschnitt 2.4.2 gezeigt wurde, liegt im Wesentlichen in der Berücksichtigung der in der Detektionsoptik verwendeten Streuscheiben. Das Ergebnis ist in Abbildung 5 dargestellt. Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit dem gemessenen statischen Fehler von 1,2 %.

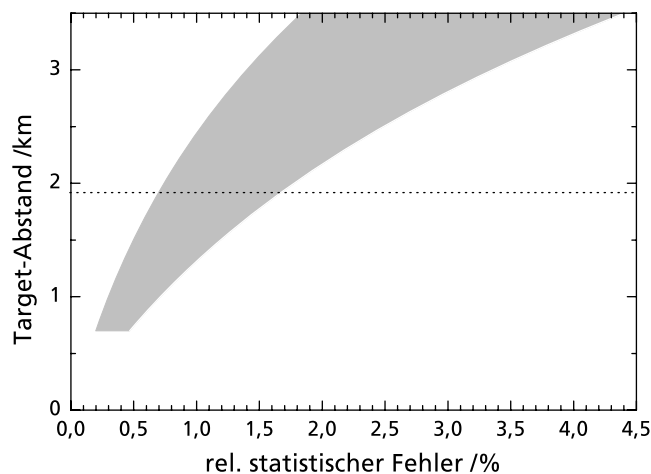


Abbildung 5: *Relativer statistischer Fehler für Messungen in horizontaler Richtung in Abhängigkeit vom Messgerät-Target-Abstand für das aufgebaute Laborsystem (median Aerosol)*

D.2 Vergleich PIN und APD

Vergleich der statistischen Fehler für ein Beispielsystem mit einer APD bzw. mit einer PIN-Diode als Detektor. Es wurde eine horizontale Messung in Bodennähe bei einer vergleichsweise hohen Aerosol-Belastung der Atmosphäre (higher quartile) angenommen. Folgende weitere Parameter wurden verwendet:

Wellenlänge	on: 1572,9918 nm off: 1573,16 nm
Transmitter	
Energie	5 mJ/Impuls
Impulsrate	10 Hz
Impulslänge	10 ns
Target	
Reflektivität	25 %
Auffächerung	5 m
Empfänger	
Teleskop-Durchmesser	15 cm
Transmission der Optik	0,8
Filter-Transmission	0,7
Bandbreite	3 MHz
Detektor	PIN (Hamamatsu G8605-11) bzw. APD (Perkin Elmer C30662E)
Mittelung	3000 Messwerte (10 min)

In Abbildung 6 wird die erhebliche Verminderung des statistischen Fehlers aufgrund der höheren Empfindlichkeit der APD deutlich.

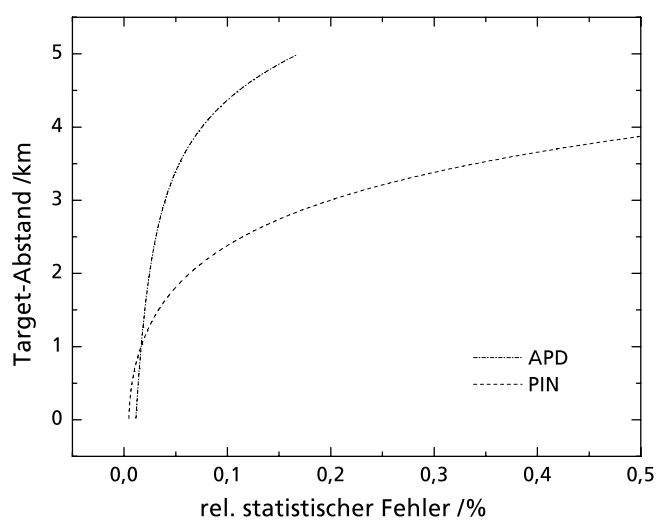


Abbildung 6: Relativer statistischer Fehler für Messungen in horizontaler Richtung in Abhängigkeit vom Messgerät-Target-Abstand; Vergleich zwischen PIN und APD (higher quartile Aerosol)

D.3 Nutzung von Wolken als Rückstreu-Medium für ein ortsauflösendes DIAL-System

Es wurde auch ein mögliches DIAL-System mit Orstauflösung simuliert, wobei innerhalb von Wolken, die als Rückstreu-Medium wirken sollen, gemessen wird (mit Algorithmen aus [84]). Es wurden dafür folgende Parameter verwendet:

Wellenlänge	on: 1572,9918 nm off: 1572,77 nm
Transmitter	
Energie	30 mJ/Impuls
Impulsrate	100 Hz
Impulslänge	10 ns
Empfänger	
Teleskop-Durchmesser	35 cm
field of view	1 mrad
Transmission der Optik	0,8
Filter-Transmission	0,7
Bandbreite	3 MHz
Detektor	APD (Perkin Elmer C30662E)
Hintergrundlicht	50 W/(m ² · sr · μm)
Filterbreite (FWHM)	1 nm
zeitliche Mittelung	3000 Messwerte (10 min)
vertikale Mittelung	500 m

Die Wolken wurden durch folgende Extinktions- und Rückstreuoeffizienten charakterisiert (gemäß ESA RMA [8]):

	Extinktionskoeffizient $\alpha / (\text{m}^{-1})$	Rückstreuoeffizient $\beta / (\text{m}^1 \cdot \text{sr}^{-1})$
Zirrus	$2,3 \cdot 10^{-3}$	$1,6 \cdot 10^{-4}$
sub-visible Zirrus	$2,0 \cdot 10^{-3}$	$1,4 \cdot 10^{-5}$

In Abbildung 7 ist zu sehen, dass nur im Falle eines sub-visible-Zirrus ein genügend großes Rückstreusignal innerhalb des Zirrus bei ausreichend geringer Absorption durch den Zirrus vorliegt, um eine ortsauflösende DIAL-Messung mit hoher Genauigkeit durchzuführen. Dieser Fall kann allerdings praktisch nicht genutzt werden, da derartige Zirren nicht in relevanten Bereichen der Atmosphäre vorkommen. Bereits normale Zirren bieten nicht genug Rückstreusignal, um eine ausreichend hohe Messgenauigkeit bei akzeptabler Reichweite zu erreichen. Aus dem gleichen Grund besteht keine Möglichkeit, die noch dichteren Wasserwolken sowie Nebel für ortsauflösende CO₂-DIAL-Messungen zu nutzen. Um Profil-Informationen zu erhalten, kommt bei IPDA-Säulenmessungen jedoch die Nutzung von durchbrochener Bewölkung (mit Wolken als Hard Target) in Frage (s. Abschn. 1.3.2).

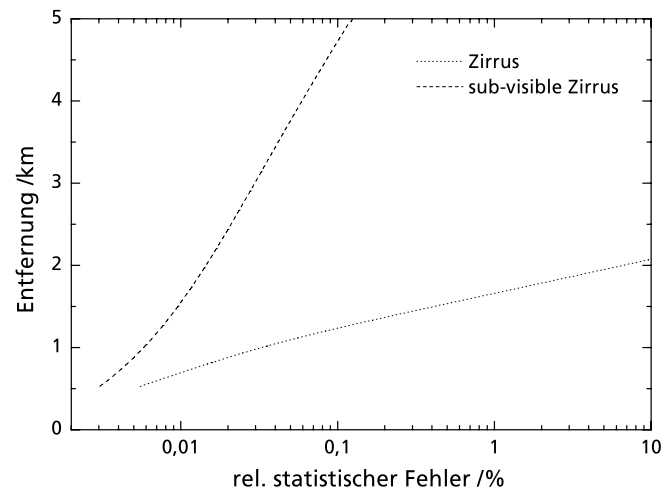


Abbildung 7: Relativer statistischer Fehler für Messungen in horizontaler Richtung in Abhängigkeit vom Messgerät-Target-Abstand für die Messung innerhalb eines Zirus sowie eines sub-visible-Zirus

E. Bilder: Messstrecke und Laboraufbau

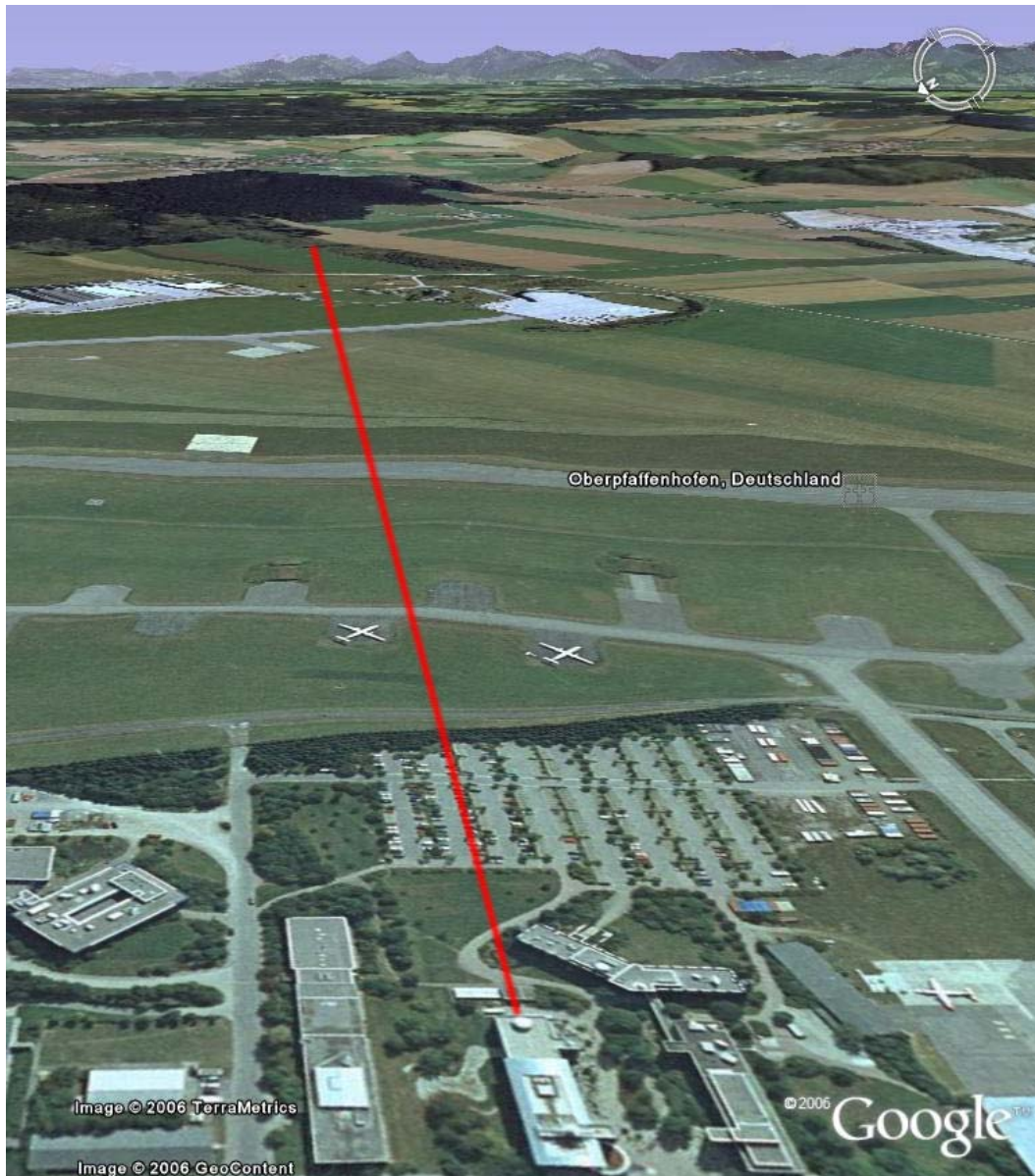


Abbildung 8: Illustration der Messstrecke zwischen Labor und einer Baumgruppe in ca. 2 km Entfernung mit rot eingezeichnetem Strahlverlauf; unten: Teile des Geländes des DLR Oberpfaffenhofen; Mitte: die Roll- und Startbahnen des Sonderflughafens Oberpfaffenhofen (Darstellung 1,5fach überhöht);

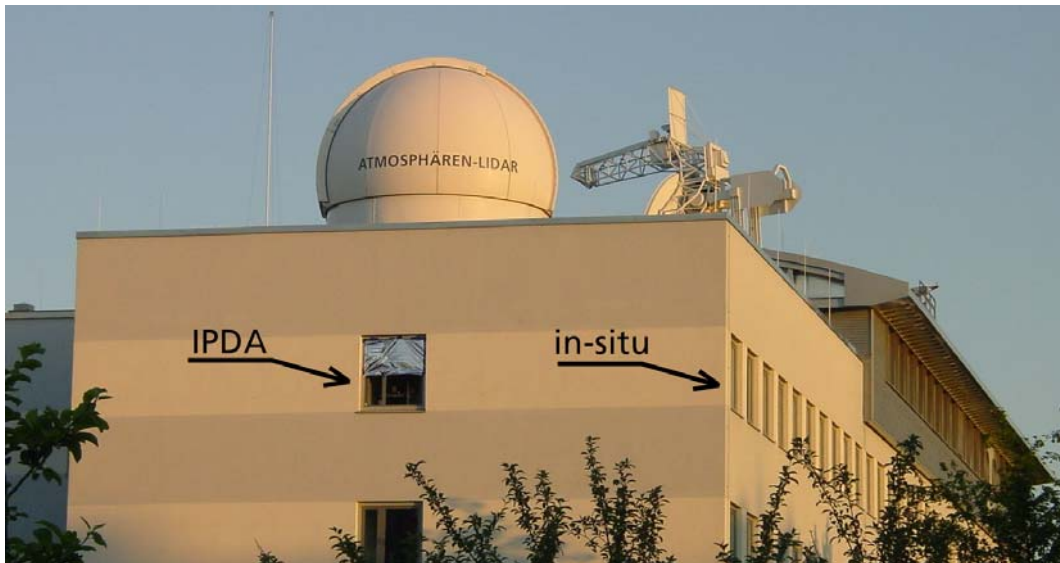


Abbildung 9: Das Labor liegt im 3. Stock des Instituts für Physik der Atmosphäre; Mitte: Fenster mit Sende-/Empfangsoptik ; rechts: Fenster, an dem die Umgebungsluft für die In-situ-Messung angesaugt wurde



Abbildung 10: Sicht entlang der Messstrecke über das Empfangsteleskop zur Baumgruppe, die als Hard-Target diente

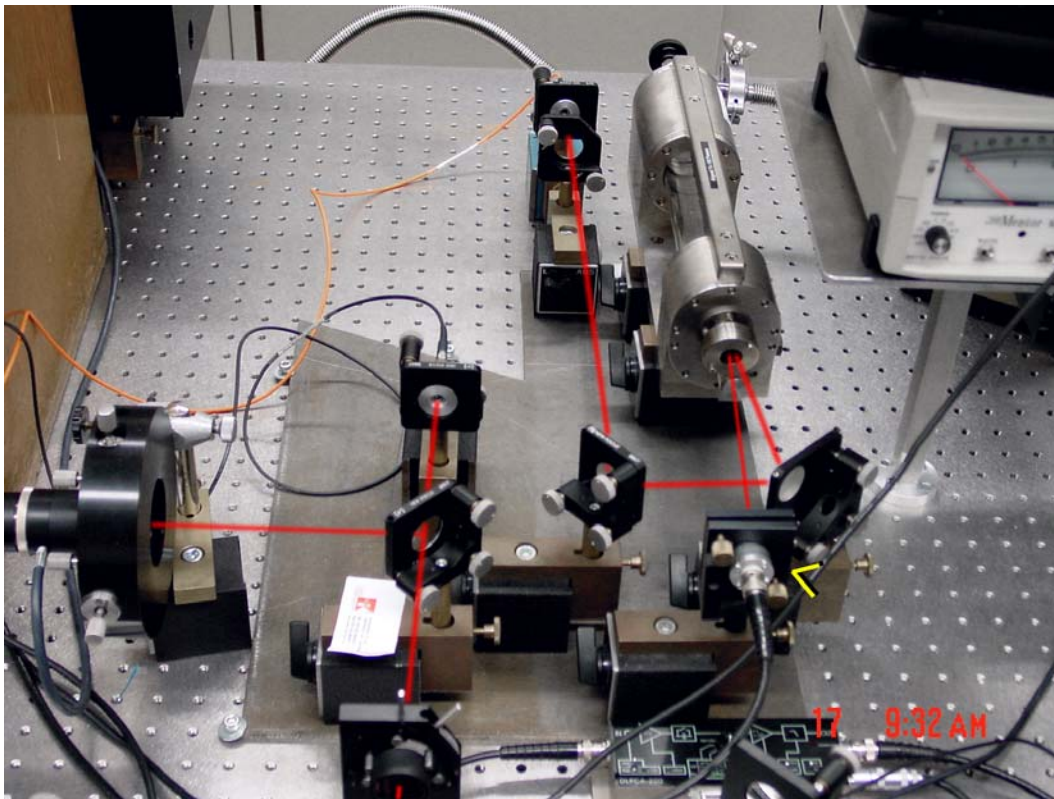


Abbildung 11: Aufbau der Online-Seedlaser-Stabilisierung sowie des FPI (zur Untersuchung der DFB-Laser) mit eingezeichnetem Strahlengang; (rechts oben: 36 m-Multipasszelle, links unten: scanning Fabry-Perot-Interferometer)

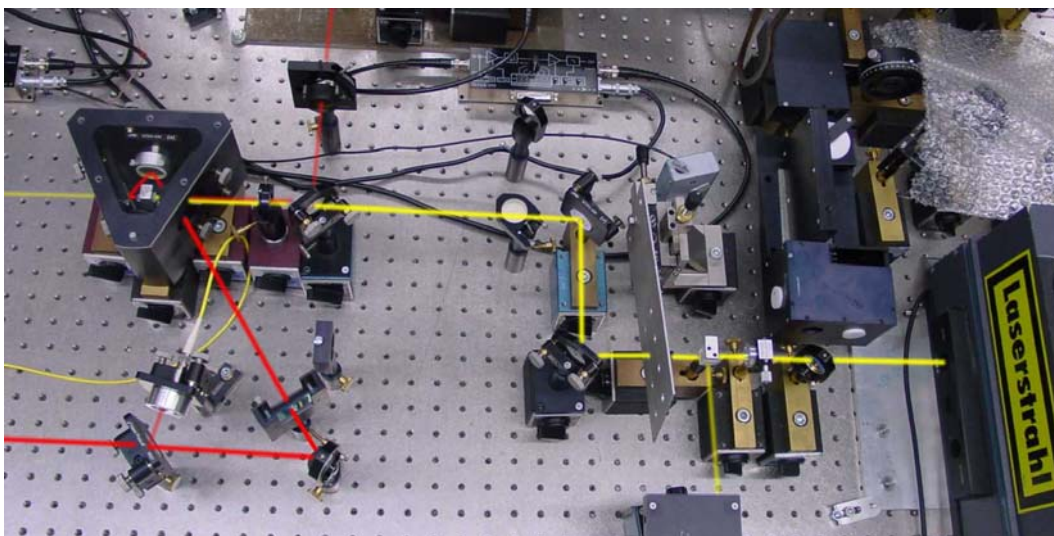


Abbildung 12: Aufbau der Laserlichtquelle: Nd:YAG-Pumplaser (rechts), OPO (links), Strahlengang des Nd:YAG-Lasers (gelb), Strahlengang der OPO-Strahlung (rot), Seeder-einkopplung (von oben, rot)

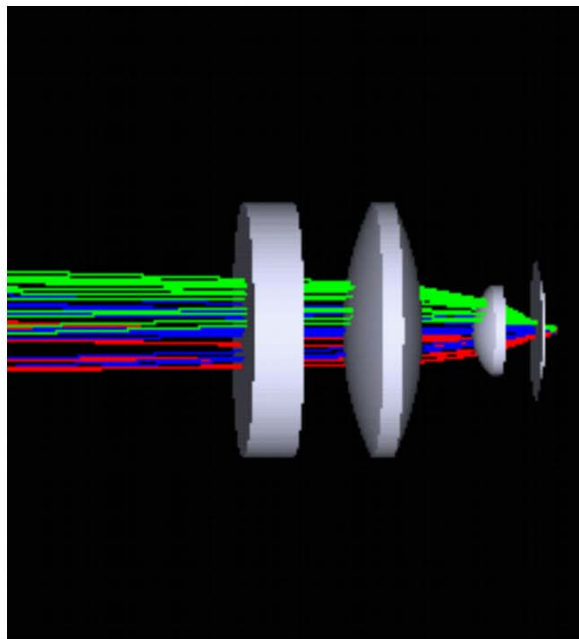
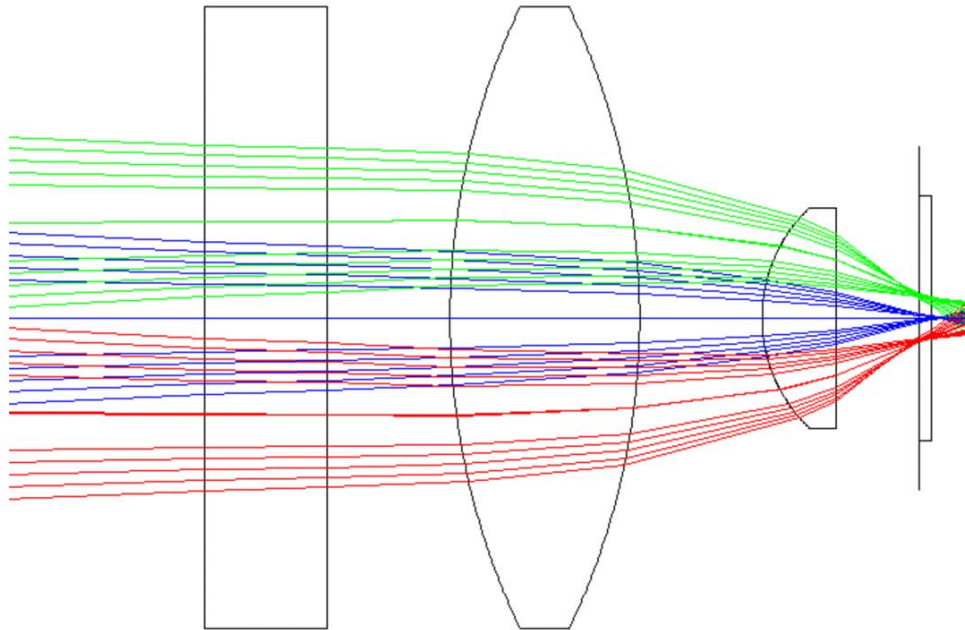


Abbildung 13: Mittels ZEMAX optimierter Strahlengang der fokussierenden Optik; von links nach rechts: Strahlenbündel vom Empfangsteleskop geht durch Filter, Sammellinse, Kugellinse zur aktiven Fläche des Detektors

Literaturverzeichnis

- [1] National Oceanic & Atmospheric Administration (NOAA), Global Monitoring Division, Boulder, www.cmdl.noaa.gov/ccgg/trends (26.09.2006)
- [2] B. C. O'Neill, F. L. MacKellar, W. Lutz, „Population and Climate Change“, Cambridge University Press, ISBN-13 978-0-521-66242-0, New York (2001)
- [3] Illustration entnommen aus: NASA, Earth Observatory, Earth Science Enterprise, http://earthobservatory.nasa.gov/Library/CarbonCycle/carbon_cycle4 (27.09.2006)
- [4] C. Prentice, G.D. Farquhar, M.J.R. Fasham, M.L. Goulden, M. Heimann, V.J. Jaramillo, H.S. Keshgi, C. Le Quere, R. Scholes, J., and D.W.R. Wallace, „The carbon cycle and atmospheric carbon dioxide“ in „Climate Change 2001: The scientific basis“, edited by J. T. Houghton, Y. Ding, D. J. Griggs, M. Noguer, P. J. van der Linden, X. Dai, K. Maskell, and C. A. Johnson, Cambridge University Press, Cambridge, 183-237 (2002)
- [5] R. A. Houghton, „Tropical deforestation and atmospheric carbon dioxide“, *Climatic Change* **19**, 1-2, 99-118 (1991)
- [6] T. M. Smith, W. P. Cramer, R. K. Dixon, R. Leemans, R. P. Neilson, A. M. Solomon, „The global terrestrial carbon cycle“, *Water, Air, & Soil Pollution* **70**, 1-4, 19-37 (1993)
- [7] C. Rödenbeck, S. Houweling, M. Gloor, and M. Heimann, „CO₂ flux history 1982-2001 inferred from atmospheric data using a global inversion of atmospheric transport“, *Atmos. Chem. Phys.* **3**, 1919-1964 (2003)
- [8] G. Ehret, C. Kiemle, „Requirements Definition for Future DIAL Instruments“, ESA-Study, Final Report (2005)
- [9] F.-M. Bréon, „The potential of spaceborne remote sensing to contribute to the quantification of anthropogenic emissions in the frame of the Kyoto protocol“, ESA Study, Final Report (2003)
- [10] A. Chedin, R. Saunders, A. Hollingsworth, N. Scott, M. Matricardi, J. Etcheto, C. Clerbaux, R. Armante, C. Crevoisier, „The feasibility of monitoring CO₂ from high-resolution infrared sounders“, *Journal of Geophysical Research* **108**, D2 (2003)

- [11] D. Crisp, R. M. Atlas, F. M. Breon, L. R. Brown, J. P. Burrows, P. Ciais, B. J. Connor, S. C. Doney, I. Y. Fung, D. J. Jacob et al., „The Orbiting Carbon Observatory (OCO) mission“, *Advances in Space Research*, Volume **34**, **4**, 700-709 (2004)
- [12] T. Hamazaki, A. Kuze, K. Kondo, „Sensor system for Greenhouse Gas Observing Satellite (GOSAT)“, *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.* **5543**, 275-282 (2004)
- [13] S. Noel, J. P. Burrows, H. Bevensmann, J. Frerick, K. V. Chance, A. H. P. Goede, C. Muller, „Atmospheric trace gas sounding with SCIAMACHY“, *Advances in Space Research* **26**, **12**, 1949-1954 (2000)
- [14] R. J. Engelen, G. L. Stephens, „Information Content of Infrared Satellite Sounding Measurements with Respect to CO₂“, *Journal of Applied Meteorology* **43**, **1**, 373-378 (2004)
- [15] S. Houweling, W. Hartmann, I. Aben, H. Schrijver, J. Skidmore, G. J. Roelofs, F. M. Breon, „Evidence of systematic errors in SCIAMACHY-observed CO₂ due to aerosols“, *Atmospheric Chemistry & Physics* **5**, 3003 (2005)
- [16] Fernmeßverfahren - Messungen in der Atmosphäre nach dem LIDAR-Prinzip - Messen gasförmiger Luftverunreinigungen mit dem DAS-LIDAR - Richtlinie VDI 4210 Blatt 1
- [17] E. V. Browell, S. Ismail, W. B. Grant, „Differential absorption lidar (DIAL) measurements from air and space“, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **67**, 399 (1998)
- [18] R. A. Baumgartner, R. L. Byer, „Continuously tunable IR lidar with applications to remote measurements of SO₂ and CH₄“, *Applied Optics*. **17**, 3555-3561 (1978)
- [19] C. Weitkamp, „Lidar: range resolved optical remote sensing of the atmosphere“, Springer, ISBN 0-387-40075-3, New York (2005)
- [20] J. L. Bufton, T. Itabe, L. L. Strow, C. L. Korb, B. M. Gentry, C. Y. Weng, „Frequency-doubled CO₂ lidar measurement and diode laser spectroscopy of atmospheric CO₂“, *Applied Optics* **22**, 2592-2602 (1983)
- [21] N. Sugimoto, A. Minato, „Long-path absorption measurement of CO₂ with a Raman-shifted tunable dye laser“, *Applied Optics* **32**, 6827 (1993)
- [22] A. Ansmann, M. Riebesell, U. Wandinger, C. Weitkamp, E. Voss, W. Lahmann, W. Michaelis, „Combined raman elastic-backscatter LIDAR for vertical profiling of moisture, aerosol extinction, backscatter, and LIDAR ratio“, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **55**, 18-28 (1992)
- [23] E. Remsberg, L. Gordley, „Analysis of differential absorption lidar from the Space Shuttle“, *Applied Optics* **17**, 624 (1978)

- [24] P. F. Ambrico, A. Amodeo, P. Di Girolamo, and N. Spinelli, „Sensitivity Analysis of Differential Absorption Lidar Measurements in the Mid-Infrared Region“, *Applied Optics* **39**, 6847-6865 (2000)
- [25] R. T. Menzies, D. M. Tratt, „Differential Laser Absorption Spectrometry for Global Profiling of Tropospheric Carbon Dioxide: Selection of Optimum Sounding Frequencies for High-Precision Measurements“, *Applied Optics* **42**, 6569-6577 (2003)
- [26] G. J. Koch, B. W. Barnes, M. Petros, J. Y. Beyon, F. Amzajerjian, J. Yu, R. E. Davis, S. Ismail, S. Vay, M. J. Kavaya, U. N. Singh, „Coherent Differential Absorption Lidar Measurements of CO₂“, *Applied Optics* **43**, 5092-5099 (2004)
- [27] F. Gibert, P. H. Flamant, D. Bruneau, C. Loth, „Two-micrometer heterodyne differential absorption lidar measurements of the atmospheric CO₂ mixing ratio in the boundary layer“, *Applied Optics* **45**, 4448-4458 (2006)
- [28] S. Ismail, G. J. Koch, M. N. Abedin, T. Refaat, K. Davis, C. Miller, U. N. Singh, S. Vay, T. Mack, „Design, Development and Validation of a High Sensitivity DIAL System for Profiling Atmospheric CO₂“, *Proceedings of the 23rd International Laser Radar Conference* **1** in Nara, Japan, 349-352 (2006)
- [29] G. D. Spiers, R. T. Menzies, D. M. Tratt, and M. Phillips, „The laser absorption spectrometer for carbon dioxide sink and source detection“, *Proceedings of the Second Annual Earth Science Technology Conference, NASA Earth Science Technology Office, Greenbelt* (2002)
- [30] M. A. Krainak, A. E. Andrews, G. R. Allan, J. F. Burris, H. Riris, X. Sun, J. B. Abshire, „Measurements of atmospheric CO₂ over a horizontal path using a tunable-diode-laser and erbium-fiber-amplifier at 1572 nm“, *Conference on Lasers and Electro-Optics, CLEO '03*, 878- 881 (2003)
- [31] G. D. Spiers, S. Geier, M. W. Phillips, R. T. Menzies, „The JPL Carbon Dioxide Laser Absorption Spectrometer“, *Proceedings of the 23rd International Laser Radar Conference* **2** in Nara, Japan, 1031-1032 (2006)
- [32] J. Burris, A. Andrews, H. Riris, J. Abshire, A. Gates, M. Krainak, X. Sun, „Profiling CO₂ within the Planetary Boundary Layer“, *Proceedings of the 23rd International Laser Radar Conference* **1** in Nara, Japan, 531-533 (2006)
- [33] F. Gibert, P. H. Flamant, D. Bruneau, „Tropospheric CO₂-DIAL Measurements“, *Proceedings of the 23rd International Laser Radar Conference* **1** in Nara, Japan, 537-540 (2006)
- [34] T. Nagai, C. Nagasawa, M. Abo, Y. Shibata, J. Ono, D. Sakaizawa, M. Nakazato, „Development of the CO₂ DIAL System Using 1,6 μ m Absorption Band“, *Proceedings of the 23rd International Laser Radar Conference* **1** in Nara, Japan, 541-544 (2006)

- [35] P. Brockman, R. V. Hess, L. D. Staton, C. H. Biar, „DIAL with Heterodyne Detection Including Speckle Noise“, NASA Tech. Paper **1725** (1980)
- [36] P. C. S. Devara, „Remote sensing of atmospheric aerosols from active and passive optical techniques“, *Int. J. Remote Sensing* **19**, **17**, 3271-3288 (1998)
- [37] P. Mörl, M. E. Reinhardt, W. Renger, R. Schellhase, „The use of airborne lidar system ALEX-F for aerosol tracing in the lower troposphere“, *Beitr. Phys. Atmos.* **54**, **4**, 403-410 (1981)
- [38] W. Demtröder, „Molekülphysik“, R. Oldenbourg Verlag GmbH, ISBN 3-489-24974-6, München (2003)
- [39] G. Herzberg, „Molecular Spectra and Molecular Structure: II. Infrared and Raman Spectra of Polyatomic Molecules“, Van Nostrand Reinhold Company, New York (1945)
- [40] G. Herzberg, „Molecular Spectra and Molecular Structure: I. Spectra of Diatomic Molecules“, Van Nostrand Reinhold Company, New York (1950)
- [41] M. Weissbluth: „Atoms and Molecules“, Academic Press, ISBN 0-12-744452-1, San Diego (1978)
- [42] F. Schreier, „The Voigt and complex error function - A comparison of computational methods“, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **48**, **5-6**, 743-762 (1992)
- [43] W. Demtröder, „Laser Spectroscopy“, Springer, ISBN 0-387-10343-0, Berlin-Heidelberg (1981)
- [44] L. S. Rothman, C. P. Rinsland, A. Goldman, S. T. Massie, D. P. Edwards, J. M. Flaud, A. Perrin, C. Camy-Peyret, V. Dana, J. Y. Mandin, J. Schroeder, A. McCann, R. R. Gamache, R. B. Wattson, K. Yoshino, K. Chance, K. Jucks, L. R. Brown, V. Nemtchinov, P. Varanasi, „The HITRAN Molecular Spectroscopic Database and HAWKS (HITRAN Atmospheric Workstation): 1996 Edition“, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **60**, 665-710 (1998)
- [45] S. Ismail, E. V. Browell, „Airborne and spaceborne lidar measurements of water vapor profiles: a sensitivity analysis“, *Applied Optics* **28**, 3603-3615 (1989)
- [46] E. V. Browell, S. Ismail, B. E. Grossmann, „Temperature sensitivity of differential absorption lidar measurements of water vapor in the 720-nm region“, *Applied Optics* **30**, 1517-1524 (1991)
- [47] L.S. Rothman, R.L. Hawkins, R.B. Wattson, R.R. Gamache, „Energy levels, intensities and linewidth of atmospheric carbon dioxide bands“, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **48**, **5/6**, 537 (1992)

- [48] J. Henningsen, H. Simonsen, „The (22^01-00^00) Band of CO_2 at 6348 cm^{-1} : Line-strengths, Broadening Parameters, and Pressure Shifts“, *Journal of Molecular Spectroscopy* **203**, 16-27 (2000)
- [49] L. Bergmann, C. Schäfer, „Lehrbuch der Experimentalphysik, Band III Optik“, Walter de Gruyter & Co, ISBN 3-11-010882-8, Berlin (1987)
- [50] F. Nicodemus, „Reflectance nomenclature and directional reflectance and emissivity“, *Applied Optics* **9**, 1474–1475 (1970)
- [51] M. J. Kavaya, R. T. Menzies, D. A. Haner, U. P. Oppenheim, and P. H. Flamant, „Target reflectance measurements for calibration of lidar atmospheric backscatter data“, *Applied Optics* **22**, 2619 (1983)
- [52] W. B. Grant, „Effect of differential spectral reflectance on DIAL measurements using topographic targets“, *Applied Optics* **21**, **13**, 2390-2394 (1982)
- [53] M. J. T. Milton, P. T. Woods, „Pulse averaging methods for a laser remote monitoring system using atmospheric backscatter“, *Applied Optics* **26**, 2598 (1987)
- [54] P.S. Bakwin, P. P. Tans, D. F. Hurst, C. Zhao, „Measurement of carbon dioxide on very tall towers: results of the NOAA/CMDL program“ *Tellus* **50B**, 401-415 (1998)
- [55] R. T. Menzies and M. T. Chahine, „Remote atmospheric sensing with an airborne laser absorption spectrometer“, *Applied Optics* **13**, 2840 (1974)
- [56] C. Kittel, „Einführung in die Festkörperphysik“, R. Oldenbourg Verlag GmbH, ISBN 3-486-20240-5, München (1988)
- [57] P. N. Butcher, D. Cotter, „Elements of nonlinear Optics“, Cambridge University Press, ISBN 0-521-34183-3, Cambridge (1990)
- [58] A. Fix, „Untersuchung der spektralen Eigenschaften von optischen parametrischen Oszillatoren aus dem optisch nichtlinearen Material Betabariumborat“, Dissertation, Shaker Verlag, ISBN 3-8265-0912-9, Aachen (1995)
- [59] E. S. Cassedy, M. Jain, „A theoretical study of injection tuning of optical parametric oscillators“, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **15**, 1290-1301 (1979)
- [60] G. Anderson, S. Clough, F. Kneizys, J. Chetwynd, and E. Shettle, „AFGL Atmospheric Constituent Profiles (0-120 km)“, Tech. Rep. AFGL-TR-86-0110, Hanscom AFB, MA 01736 (1986)
- [61] A. Yariv, P. Yeh, „Optical Waves in Crystals“, John Wiley & Sons, ISBN 0-471-09142-1, New York (1984)
- [62] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, D. N. Nikogosyan, „Handbook of nonlinear optical Crystals“, Springer-Verlag, ISBN 0-387-53547-0, Berlin-Heidelberg (1991)

- [63] F. Zernike, J. E. Midwinter, „Applied nonlinear optics“, John Wiley & Sons, ISBN 0-471-98212-1, New York (1973)
- [64] R. L. Byer, „Nonlinear Optical Phenomena and Materials“, Annual Review of Materials Science **4** 147-190 (1974)
- [65] M. V. Hobden, „Phase-Matched Second-Harmonic Generation in Biaxial Crystals“ J. Appl. Phys. **38**, 4365 (1967)
- [66] G. C. Bhar, A. M. Rudra, A. K. Chaudhary, T. Sasaki, Y. Mori, „Highly efficient difference-frequency generation in KTP“, Applied Physics B: Lasers and Optics **63**, 141-144 (1996)
- [67] A. V. Smith, „How to select nonlinear crystals and model their performance using SNLO software“, Proc. SPIE **3928**, 62-69 (2000)
- [68] G. Hansson, H. Karlsson, S. Wang, and F. Laurell, „Transmission Measurements in KTP and Isomorphic Compounds“, Applied Optics **39**, 5058-5069 (2000)
- [69] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P. S. Pershan, „Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric“, Physical Review **127**, 1918-1939 (1962)
- [70] J. Hellström, „Nanosecond optical parametric oscillators and amplifiers based on periodically poled KTiOPO₄“, Dissertation, Universitetservice US-AB, Tryck & Media, ISBN 91-7283-214-2, Stockholm (2001)
- [71] P. B. W. Burmester, T. Kellner, K. Petermann, G. Huber, R. Uecker, P. Reiche, „Type-I non-critically phase-matched second-harmonic generation in Gd_{1-x}Y_xCa₄O(BO₃)₃“, Applied Physics B: Lasers and Optics **68**, **6**, 1143-1146 (1999)
- [72] H. M. van Driel, „Synchronously pumped optical parametric oscillators“, Applied Physics B: Lasers and Optics, **60**, 411 (1995)
- [73] N. Boeuf, D. Branning, I. Chaperot, E. Dauler, S. Guerin, G. Jaeger, A. Muller, and A. Migdall, „Calculating characteristics of noncollinear phase matching in uniaxial and biaxial crystals“, Opt. Eng. **39**, 1016 (2000)
- [74] M. Seiter, D. Keller, M. W. Sigrist, „Broadly tunable difference-frequency spectrometer for trace gas detection with noncollinear critical phase-matching in LiNbO₃“, Applied Physics B: Lasers and Optics **67**, 351 (1998)
- [75] C. L. Tang, W. R. Bosenberg, T. Ukachi, R. J. Lane, L. K. Cheng, „Optical parametric oscillators“, IEEE, Proceedings. **80**, **3**, 365-374 (1992)
- [76] J. A. Giordmaine, R. C. Miller, „Tunable Coherent Parametric Oscillation in LiNbO₃ at Optical Frequencies“, Phys. Rev. Lett. **14**, **24**, 973-976 (1965)
- [77] R. L. Byer, M. K. Oshman, J. F. Young, S. E. Harris, „Visible cw parametric oscillator“, Appl. Phys. Lett. **13**, 109 (1968)

- [78] K. Burneika, M. Ignatavicius, V. Kabelka, A. Piskarskas, A. Stabinis, „Parametric light amplification and oscillation in KDP with mode-locked pump“, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **8**, **6**, 574- 574 (1972)
- [79] O. Votava, J. R. Fair, D. F. Plusquellic, E. Riedle, D. J. Nesbitt, „High resolution vibrational overtone studies of HOD and H₂O with single mode, injection seeded ring optical parametric oscillators“, *J. Chem. Phys.* **107**, 8854 (1997)
- [80] S. Brosnan, R. Byer, „Optical parametric oscillator threshold and linewidth studies“, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **15**, **6**, 415-431 (1979)
- [81] G. Anstett, A. Borsutzky, R. Wallenstein, „Investigation of the spatial beam quality of pulsed ns-OPOs“, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **76**, 541-545 (2003)
- [82] C. Cahen, G. Megie, „A spectral limitation of the range resolved DIAL technique“, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **25**, 151-157 (1981)
- [83] J. E. Bjorkholm, H. G. Danielmeyer, „Frequency Control of a Pulsed optical parametric oscillator by radiation injection“, *Appl. Phys. Lett.* **15**, 171 (1969)
- [84] G. Ehret, C. Kiemle, B. Mayer, M. Wirth „WALES (Water Vapour Lidar Experiment in Space): A Sensitivity Analysis“, *Proc. 21th ILRC, Lidar Remote Sensing In Atmospheric and Earth Sciences* **2**, Quebec, Canada, 759-762 (2002)
- [85] W. B. Grant, A. M. Brothers, J. R. Bogan, „Differential absorption lidar signal averaging“, *Applied Optics* **27**, 1934 (1988)
- [86] A. Rogalski, „Infrared detectors“, Gordon and Breach Science Publishers, ISBN 90-5699-203-1, Amsterdam (2000)
- [87] T. Imasaka, „Laser spectroscopy on organic molecules“, *Fresenius' Journal of Analytical Chemistry* **355**, **3**, 216 (1996)
- [88] F. Möller, „Einführung in die Meteorologie I“, Bibliographisches Institut-Wissenschaftsverlag, ISBN 3-411-00276-X, Mannheim (1973)
- [89] Y. Ding, V.I. Perevalov, S.A. Tashkun, J.-L. Teffo, A.-W. Liu, S.-M. Hu, „¹⁶O¹³C¹⁸O: high-resolution absorption spectrum between 4000 and 9500 cm⁻¹ and global fitting of vibration-rotational line positions“, *Journal of Molecular Spectroscopy* **222**, 276 (2003)
- [90] J. E. Hansen, L. D. Travis, „Light Scattering in Planetary Atmospheres“, *Space Science Reviews* **16**, 527 (1974)
- [91] T. J. Mckee, J. Lobin, and W. A. Young, „Dye laser spectral purity“, *Applied Optics* **21**, 725 (1982)
- [92] N. Menyuk, D. K. Killinger, „Assesment of relative error sources in IR DIAL measurement accuracy“, *Applied Optics* **22**, **17**, 2690-2698 (1983)

- [93] Reproduced from the ASTER Spectral Library through the courtesy of the Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology, Pasadena, California. ©1999, California Institute of Technology. ALL RIGHTS RESERVED (<http://speclib.jpl.nasa.gov/>)
- [94] J. Bryan Blair, David L. Rabine, Michelle A. Hofton, „The Laser Vegetation Imaging Sensor: a medium-altitude, digitisation-only, airborne laser altimeter for mapping vegetation and topography“, *Isprs Journal Of Photogrammetry And Remote Sensing*, **54**, 115-122 (1999)
- [95] M. A. Lefsky, W.B. Cohen, G. G. Parker, D. J. Harding, „Lidar remote sensing for ecosystem studies“, *Bioscience*, **52**, 1, 19-30 (2002)
- [96] D. K. Killinger, N. Menyuk, and W. E. DeFeo, „Experimental comparison of heterodyne and direct detection for pulsed differential absorption CO₂ lidar“, *Applied Optics* **22**, 682 (1983)
- [97] M. Nishi, S. Tanabe, K. Fujita, K. Hirao, „Variation of emission spectra of Er³⁺-doped YAG-based solid solution“, *Journal of alloys and compounds* **408-412**, 788-790 (2006)
- [98] E. Georgiou, F. Kiriakidi, O. Musset, Jean-Pierre Boquillon, „1.65- μ m Er:Yb:YAG diode-pumped laser delivering 80-mJ pulse energy“, *Opt. Eng.* **44**, 064202 (2005)
- [99] S. Taccheo, P. Laporta, O. Svelto, „Linearly polarized, single-frequency, widely tunable Er:Yb bulk laser at around 1550 nm wavelength“, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 3128 (1996)
- [100] S. Taccheo, P. Laporta, C. Svelto, „Widely tunable single-frequency erbium-ytterbium phosphate glass laser“, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2621 (1996)
- [101] P. G. Zverev, T. T. Basiev, A. M. Prokhorov, „Stimulated Raman scattering of laser radiation in Raman crystals“, *Optical Materials* **11**, 4, 335-352 (1999)
- [102] H. J. Eichler, G. M. A. Gad, A. A. Kaminskii, H. Rhee, „Raman crystal lasers in the visible and near-infrared“, *Journal of Zhejiang University (Science)* **4**, 3, 241-253 (2003)
- [103] G. W. Baxter, H. D. Barth, B. J. Orr, „Laser spectroscopy with a pulsed, narrow-band infrared optical parametric oscillator system: a practical, modular approach“, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **66**, 653-657 (1998)
- [104] S. Harrell-Klein, W. E. Wilcox, D. K. Killinger, G. A. Rines, R. A. Schwarz, „High-power eye-safe 1.57- μ m optical parametric oscillator (OPO) lidar for atmospheric boundary-layer measurements“, *Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng.* **2366**, 354-357 (1995)

- [105] G. Ehret, A. Fix, V. Weiss, G. Poberaj, T. Baumert, „Diode-laser-seeded optical parametric oscillator for airborne water vapor DIAL application in the upper troposphere and lower stratosphere“, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **67**, **4**, 427 - 431 (1998)
- [106] L. A. Rahn, „Feedback stabilization of an injection-seeded Nd:YAG laser“, *Applied Optics*. **24**, 940-942 (1985)
- [107] J. A. J. Fitzpatrick, O. V. Chekhlov, J. M. F. Elks, C. M. Western, S. H. Ashworth, „An injection seeded narrow bandwidth pulsed optical parametric oscillator and its application to the investigation of hyperfine structure in the PF radical“, *J. Chem. Phys.* **115**, 6920 (2001)
- [108] A. Fix, V. Weiss, G. Ehret, „Injection-seeded optical parametric oscillator for airborne water vapour DIAL“, *Pure Applied Optics* **7**, 837-852 (1998)
- [109] M. Rahm, U. Bäder, G. Anstett, J.-P. Meyn, R. Wallenstein, A. Borsutzky, „Pulse-to-pulse wavelength tuning of an injection seeded nanosecond optical parametric generator with 10 kHz repetition rate“, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **75**, **1**, 47-51 (2002)
- [110] G. Tränkle, „Laserdioden - Komplexe Bauelemente mit vielen Vorteilen“ WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, *Laser Technik Journal* **1** (2005)
- [111] R. P. Salathé, „Diode lasers coupled to external resonators“, *Applied Physics A: Materials Science & Processing* **20**, **1**, 1-18 (1979)
- [112] A. S. Arnold, J. S. Wilson, and M. G. Boshier, „A simple extended-cavity diode laser“, *Rev. Sci. Instrum.* **69**, 1236 (1998)
- [113] M. Lackner, F. Winter, G. Totschnig, M. Ortsiefer, J. Roskopf, M.-C. Amann, R. Shau, „Spektroskopischer Einsatz neuer langwelliger (bis 2 μm) Diodenlaser (VCSEL) für schwierige Bedingungen“, Oldenburg Verlag, *Technisches Messen* **70** (2003)
- [114] J. Posthumus, A. Deninger, F. Lison: “Distributed Feedback Diode Lasers Spectral properties an current applications“ TOPTICA Photonics AG, Gräfelfing, Publication Download (www.toptica.com/products/itemlayer/51/DFB-diode-lasers.pdf) (2005)
- [115] Yuan-Kuang Tu, Wei Lin, Jy-Wang Liaw, C. J. Hwang, „Recent developments in photonic devices for telecommunication applications in Taiwan“, *Optical and Quantum Electronics* **28**,**10**, 1259-1267 (1996)
- [116] G. Keiser, „Optical Communications Essentials“ The MacGraw-Hill Companies, ISBN 0-07-141204-2, New York (2003)
- [117] C. Lemmerz, „Untersuchungen zur Wellenlängenveränderung eines gepulsten optischen parametrischen Oszillators im nahen infraroten Spektralbereich durch synchronisiertes Injection Seeding mit einem Distributed Feedback Quantum Well Diodenlaser“, Masterarbeit, Fachhochschule München (2004)

- [118] H. H. Klingenberg, P. Mahnke, „Wavelength switching in the acceptance bandwidth of a dual injection seeded optical parametric oscillator“, Proceedings of SPIE, XIth Conference on Laser Optics, LO 2003, 5481, 108-114 (2004)
- [119] G. Poberaj, A. Fix, A. Assion, M. Wirth, C. Kiemle, „Airborne all-solid-state DIAL for water vapour measurements in the tropopause region: system description and assessment of accuracy“, Applied Physics B: Lasers and Optics **75**, **2**, 165-172 (2002)
- [120] J. B. McManus, P. L. Kebabian, and M. S. Zahniser, „Astigmatic mirror multipass absorption cells for long-path-length spectroscopy“, Applied Optics **34**, 3336 (1995)
- [121] G. Kleemann, „Grundlagen der Regelungstechnik“, Fachhochschule Oldenburg/Ostfriesland/Wilhelmshaven FB Naturwissenschaftliche Technik (<http://spot.fho-emden.de/hp/kleemann/kleemann.html>) (28.11.2006)
- [122] H. Nasu, T. Takagi, T. Mukaihara, T. Nomura, A. Kasukawa, M. Oike, T. Nonomiya, „Wavelength Monitor Integrated CW DFB Laser Module for DWDM Applications“, Furukawa Electric Co., Ltd. Japan, Furukawa Review No. **23**, (www.furukawa.co.jp/review) (2003)
- [123] M. Hercher, „The spherical mirror Fabry-Perot interferometer“, Applied Optics **7**, 951 (1968)
- [124] R. T. White, Y. He, B. J. Orr, M. Kono, and K. G. H. Baldwin, „Pulsed injection-seeded optical parametric oscillator with low frequency chirp for high-resolution spectroscopy“, Opt. Lett. **28**, 1248-1250 (2003)
- [125] J. M. Geary, „Introduction to Lens Design with Practical Zemax Examples“, Willmann-Bell, ISBN 0-943396-75-1, Richmond (2002)
- [126] A. Rogalski, „Infrared detectors: an overview“, Infrared Physics and Technology **43**, 187-210 (2002)
- [127] K. Kato, E. Takaoka, „Sellmeier and Thermo-Optic Dispersion Formulas for KTP“, Applied Optics **41**, 5040-5044 (2002)
- [128] W. Wiechmann, S. Kubota, T. Fukui, H. Masuda, „Refractive-index temperature derivatives of potassium titanyl phosphate“, Opt. Lett. **18**, 1208 (1993)
- [129] Produktbeschreibung KTP-Kristalle, Fujian Castech Crystals, Inc., Fujian, China, (www.castech.com) (07.09.2005)
- [130] Produktbeschreibung KTP-Kristalle, Cristal Laser S.A., Messein, Frankreich, (www.cristal-laser.fr) (07.09.2005)
- [131] A. E. Siegman, „Defining the effective radius of curvature for a nonideal optical beam“, IEEE Journal of Quantum Electronics **27**, 1146-1148 (1991)

- [132] K. W. Thoninf, T. J. Conway, N. Zhang, D. Kitzis, „Analysis system for measurement of CO₂ mixing ratios in flask air samples“, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* **12**, **6**, 1349–1356 (1995)
- [133] Z. Yang, G. C. Toon, J. S. Margolis, P. O. Wennberg, „Atmospheric CO₂ retrieved from ground-based near IR solar spectra“, *Geophysical Research Letters* **29**, **9**, 53-1 (2002)
- [134] R. Reiter, H. J. Kanter, „Time Behavior of CO₂ and O₃ in the Lower Troposphere Based on Recordings from Neighboring Mountain Stations Between 0.7 and 3.0 km ASL Including the Effects of Meteorological Parameters“, *Arch. Met. Geoph. Biokl., Ser. B* **30**, 191-225 (1982)
- [135] K. C. Foote, M. Schaedle, „Diurnal and Seasonal Patterns of Photosynthesis and Respiration by Stems of *Populus tremuloides* Michx.“, *Plant Physiol.* **58**, **5**, 651-655 (1976)
- [136] R. Valentini, G. Matteucci, A. J. Dolman, E. D. Schulze, C. Rebmann, E. J. Moors, A. Granier, P. Gross, N. O. Jensen, K. Pilegaard, “Respiration as the main determinant of carbon balance in European forests“, *Nature* **404**, 6780, 861-865 (2000)
- [137] H. Häckel, „Meteorologie“, Ulmer Verlag, ISBN 3-8001-2728-8, Stuttgart (1999)

Danksagung

Diese Arbeit wurde am Deutschen Zentrum für Luft- und Raumfahrt (DLR), am Institut für Physik der Atmosphäre (IPA) in der Lidar-Gruppe erstellt. Besonderer Dank gilt meinem Erstgutachter Prof. Dr. Ulrich Schumann, dem Institutsleiter des IPA, meinem Zweitgutachter Prof. Dr. Eberhard Riedle von der LMU-München sowie Dr. Gerhard Ehret, dem Abteilungsleiter der Lidar-Gruppe.

Allen Mitgliedern der Lidar-Gruppe möchte ich für die Unterstützung und die angenehme Arbeitsatmosphäre danken. Insbesondere Dr. Andreas Fix für die fachliche Betreuung meiner Arbeit und Dr. Martin Wirth sowie Christoph Kiemle für die Hilfe bei zahlreichen Fragen.

Georg Simmet sei für die Lösung vieler elektronischer Probleme gedankt sowie Hans Krafczyk für die Realisierung zahlreicher mechanischer Komponenten für den Laboraufbau.

Meinen Bürokollegen Christian Lemmerz und Michael Esselborn danke ich für die gute Stimmung und die vielen fruchtbaren Gespräche und Anregungen.

Bei Dr. Werner Schneidt und Hanne Breitzkreuz bedanke ich mich für die kritische Durchsicht dieser Arbeit.

Lebenslauf

Axel Rolf Amediek

geboren am 17. Juni 1975 in München

ledig

- 1994 Abitur am Pestalozzi-Gymnasium, München
- 1994 - 1997 Studium der Physik an der Ludwig-Maximilians-Universität, München
- 1997 - 2001 Studium der Physik an der Technischen Universität, München
- 2000 - 2001 Diplomarbeit extern am Max-Planck-Institut für biophysikalische Chemie in Göttingen, Thema: *Entwicklung einer Scanning-Einheit für die FCS-basierte Einzelmolekülanalyse*
- 2001 Diplom in Physik
- 2002 Zivildienst in der Medizinischen Physik/Strahlentherapie, Uniklinikum Regensburg
- 2003 - 2006 Promotionsstudium der Physik an der Ludwig-Maximilians-Universität, München
- seit 2003 Doktorand am Institut für Physik der Atmosphäre, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt, Oberpfaffenhofen